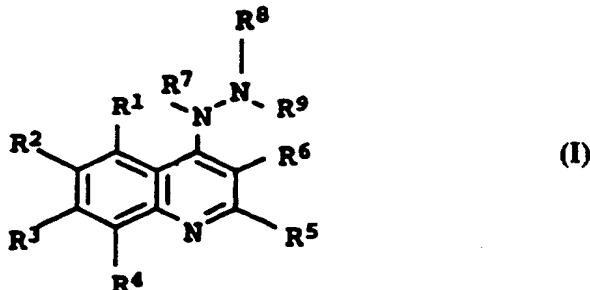




(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>C07D 215/42, A01N 43/42, C07D 401/12</b>		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 97/10215</b>
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: <b>20. März 1997 (20.03.97)</b>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: <b>PCT/EP96/03894</b></p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: <b>4. September 1996 (04.09.96)</b></p> <p>(30) Prioritätsdaten: 195 33 653.4 12. September 1995 (12.09.95) DE 195 35 208.4 22. September 1995 (22.09.95) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE)</b></p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): <b>WAGNER, Oliver [DE/DE]; Siemensstrasse 1, D-66450 Bexbach (DE). WETTERICH, Frank [DE/DE]; Robert-Koch-Strasse 4, D-67112 Mutterstadt (DE). EICKEN, Karl [DE/DE]; Am Hüttenwingert 12, D-67157 Wachenheim (DE). LORENZ, Gisela [DE/DE]; Erlenweg 13, D-67434 Hambach (DE). AMMERMANN, Eberhard [DE/DE]; Von-Gagern-Strasse 2, D-64646 Huppenheim (DE). STRATHMANN, Siegfried [DE/DE]; Donnersbergstrasse 9, D-67117 Limburgerhof (DE).</b></p> <p>(74) Gemeinsamer Vertreter: <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT; D-67056 Ludwigshafen (DE).</b></p>			<p>(81) Bestimmungsstaaten: <b>AU, BG, BR, CA, CN, CZ, GE, HU, IL, JP, KR, LV, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, TR, UA, US, eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</b></p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p>
<p>(54) Titel: <b>FUNGICIDAL QUINOLINES</b></p> <p>(54) Bezeichnung: <b>FUNGIZIDE CHINOLINE</b></p> <p>(57) Abstract</p> <p>Quinolines have the formula (I), in which the substituents have the following meaning: R<sup>7</sup> stands for hydrogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkyl, formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkoxy carbonyl; R<sup>8</sup> stands for hydrogen, formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub> alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub> alkenyl, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub> alkinyl or C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub> alkylcarbonyl, whereas said groups may be partially or totally halogenated, C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub> cycloalkyl, or C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub> cycloalkenyl, whereas these radicals may be partially or totally halogenated; R<sup>8</sup> may also stand for aryl or heteroaryl, whereas these radicals may bear one to three of the following groups: nitro, halogen, cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> halogen alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> halogen alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylamino, di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylsulfoxyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkoxy carbonyl, aryl, aryloxy; R<sup>7</sup> and R<sup>8</sup> form together a bond; and R<sup>9</sup> stands for aryl or heteroaryl. Also disclosed are fungicides and their use to control harmful fungi.</p> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Chinoline der Formel (I), in der die Substituenten die folgende Bedeutung haben: R<sup>7</sup> Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, Formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl; R<sup>8</sup> Wasserstoff, Formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkenyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylcarbonyl, wobei diese Gruppen partiell oder vollständig halogeniert sein können, C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl, oder C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkenyl, wobei diese Reste partiell oder vollständig halogeniert sein können. Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro, Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl, Aryl, Aryloxy; R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> bilden gemeinsam eine Bindung; R<sup>9</sup> Aryl oder Heteroaryl, fungizide Mittel sowie deren Verwendung zur Bekämpfung von Schädlingen.</p>			



#### **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereiniges Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	LK	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

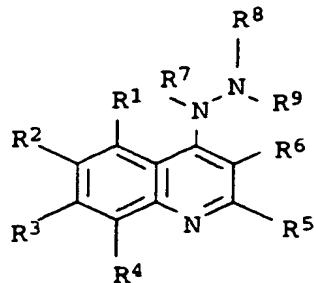
## Fungizide Chinoline

## Beschreibung

5

Die vorliegende Erfindung betrifft Chinoline der Formel I

10



I

15

in der die Substituenten die folgende Bedeutung haben:

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Hydroxy,Nitro, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy,

20

C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogen-  
alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxyalkyl,R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup> jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen,  
C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy,

25

C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio;R<sup>7</sup> Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, Formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-  
carbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl;30 R<sup>8</sup>Wasserstoff, Formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkenyl,  
C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylcarbonyl, wobei diese  
Gruppen partiell oder vollständig halogeniert sein  
können, C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl, oder C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkenyl wo-  
bei diese Reste partiell oder vollständig halogeniert  
sein können,

35

Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis drei  
der folgenden Gruppen tragen können: Nitro, Halogen,  
Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy,  
C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-  
amino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl,  
C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy,  
C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy,  
C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl, Aryl, Aryloxy;45 R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup>

bilden gemeinsam eine Bindung;

## 2

R<sup>9</sup> Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro, Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl, Aryl, Aryloxy in denen die cyclischen Substituenten ihrerseits einen bis drei der folgenden Substituenten tragen können: Halogen, Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl, Aryl, Aryloxy;

5

10

15

sowie die N-Oxide und die Säure-Additions-Salze der Chinoline der Formel I, ausgenommen die Verbindungen gemäß folgender 20 Definition der Reste:

1 a-d R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>, 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 2,4-di-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>, 2,4-di-Br-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>,

1 e-h R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 2,4-di-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub> jeweils als N-Oxid und HCl-Salz,

25 1 i R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = 4-Br-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> HBr-Salz

1 j-k R<sup>1,2,3,4,6,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>7</sup> = H, CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>

1 m R<sup>1,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>2,5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>,

1 n R<sup>1</sup> = O-CH<sub>3</sub>; R<sup>2,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub> HCl-Salz,

30 1 o-q R<sup>1,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>2</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = 4-NO<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>; HCl-Salz, N-Oxid

1 r-s R<sup>1,2,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>3</sup> = Cl; R<sup>9</sup> = 4-NO<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>

1 t-u R<sup>1,2,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = Cl; R<sup>9</sup> = 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 2,4-di-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>

1 v-x R<sup>1,4,6,7</sup> = H; R<sup>3</sup> = H; R<sup>2</sup> = H, CH<sub>3</sub>O; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub> R<sup>8,9</sup> = CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl HCl-Salz,

35 1 x R<sup>1,4,6,7</sup> = H; R<sup>3</sup> = Cl R<sup>2</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub> R<sup>8,9</sup> = CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl HCl-Salz,

1 y R<sup>1,4,6,7</sup> = H; R<sup>3</sup> = H; R<sup>2</sup> = Cl; R<sup>5</sup> = H R<sup>8,9</sup> = CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl HCl-Salz,

40 1 z R<sup>1,2,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>3</sup> = Cl; R<sup>9</sup> = CH<sub>2</sub>-3-Py,

2 a-b R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = chinolin-4-yl, Di-N-Oxid,

2 c R<sup>1,2,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = chinolin-4-yl, Di-N-Oxid,

## 3

2 d-o	$R^{1,2,3,4,5,6} = H; R^9 = C_6H_5, C_6H_5\text{ N-Oxid, } 4\text{-Cl-C}_6H_4,$ $4\text{-Cl-C}_6H_4\text{ N-Oxid, } 4\text{-Br-C}_6H_4, 4\text{-Br-C}_6H_4\text{ N-Oxid,}$ $2,4\text{-Cl-C}_6H_3, 2,4\text{-Cl-C}_6H_3\text{ N-Oxid, } 2,4\text{-Br-C}_6H_3,$ $2,4\text{-Br-C}_6H_3\text{ N-Oxid, } 4\text{-(CH}_3)_2N\text{-C}_6H_4, 4\text{-(CH}_3)_2N\text{-C}_6H_4\text{ N-Oxid,}$
5	
2 p-q	$R^{1,3,6} = H; R^5 = CH_3, R^9 = C_6H_5; R^2 = OCH_3, R^4 = OCH_3;$
2 r-s	$R^{1,3,6} = H; R^5 = CH_3; R^9 = C_6H_5; R^2 = OCH_2CH_3; R^4 =$ $OCH_2CH_3;$
2 t-v	$R^{1,2,3,4,6} = H; R^5 = Ce; R^9 = C_6H_5, 4\text{-Cl-C}_6H_4,$ $2,4\text{-Cl-C}_6H_3,$
10	
2 w	$R^{1,2,4,5,6} = H; R^3 = Cl; R^9 = C_6H_5,$
2 x	$R^{1,2,3,4,6} = H; R^5 = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
2 y	$R^{1,2,3,4} = H; R^{5,6} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
2 z	$R^{2,3,4,6} = H; R^{1,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
15 3 a	$R^{1,3,4,6} = H; R^{2,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
3 b	$R^{1,2,3,6} = H; R^{4,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
3 c	$R^{2,4,6} = H; R^{1,3,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
3 d	$R^{1,3,6} = H; R^{2,4,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5.$

20 ein Verfahren zu deren Herstellung, fungizide Mittel sowie deren Verwendung zur Bekämpfung von Schadpilzen.

Aus der WO 94/07492 sind 4-Hydrazinochinoline und 4-Hydrazonechinoline mit pharmazeutischer Wirksamkeit bekannt.

25

Aus der Literatur sind 4-Chinolinhydrazine bekannt, von einer fungiziden Wirkung dieser Verbindungen wird jedoch nichts berichtet. ( vgl: Ann. Chim. (Rome), 46(1956)1050; J. Chem. Soc., 1930, 1999; J. Chem. Soc., 1938, 1083; Yakugaku Zasshi, 65(1945)Ausg.

30 B, 431; Farmaco, Ed. Sci., 30 (1975) 965), J.Med. Chem., 12 (1969) 801.

Ebenso sind in der Literatur verschiedene Phenylazochinoline beschrieben (vgl. J. Heterocyclic Chem.; 21 (1984) 501; Ann.

35 Chim. (Rome), 46(1956)1050; J. Chem. Soc; 1084, 1938).

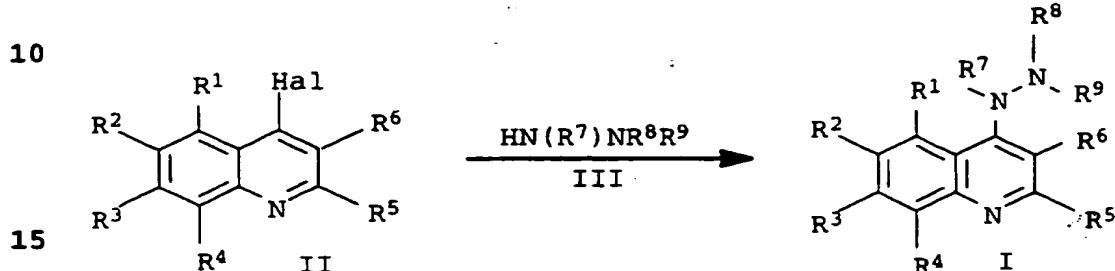
Aus der Attl. Accad. Sci. Siena Fisiocrit. (1976) 8, 43-57, sind 4-Hydrazonechinoline mit microbiozider Wirkung bekannt. Eine fungizide Wirkung gegen Pflanzenpathogene dieser Verbindungen ist 40 jedoch nicht bekannt.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, Chinolinderivate mit fungizider Wirkung zur Verfügung zu stellen.

45 Es wurde nun gefunden, daß Verbindungen der Formel I eine gute fungizide Wirkung gegen Pflanzenpathogene zeigen.

Die Verbindungen der vorliegenden Erfindung können durch Anwendung bekannter Synthesen hergestellt werden. Die Ausgangsverbindungen sind nach bekannten Methoden erhältlich.

5 Die Verbindungen der allgemeinen Formel I erhält man durch Kondensation der 4-Chlorchinoline der Formel II mit Hydrazinen der Formel III.



Die Chinoline II sind bekannt oder nach bekannten Methoden zugänglich (Tetrahedron 41 (1985) 3033-36, Organic. Syntheses, 20 Col. Vol. 3, 272 (1955), EP 497371, US 5240940).

Die Hydrazine III sind ebenfalls bekannt und nach bekannten Methoden zugänglich (vgl. Houben-Weyl, Band 10/2 Seite 1 bis 71 bzw. 169-409 vor allem 396-399 und 402-405).

25

Die Verbindungen der allgemeinen Formel I erhält man durch Kondensation der 4-Chlorchinoline II mit Hydrazinen der Formel III.

30 Vorzugsweise werden die 4-Chlorchinoline II mit den entsprechenden Hydrazinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel bei erhöhten Temperaturen zur Reaktion gebracht. Geeignete Verdünnungsmittel sind inerte organische Lösungsmittel, wie z.B. aliphatische Kohlenwasserstoffe z.B. Petrolether, aromatische Kohlenwasserstoffe z. Bsp. Toluol oder o-, m-, p-Xylol oder auch Alkohole, wie z. Bsp. n-, i-, t-Butanol zur Anwendung.

35 Teil der Erfindung sind auch die Salze der Verbindungen I und zwar insbesondere die Salze von Mineralsäuren oder Lewissäuren.

40 Üblicherweise kommt es auf die Art des Salzes nicht an. Im Sinne der Erfindung sind solche Salze bevorzugt, die die von Schadpilzen freizuhaltenden Pflanzen, Flächen, Materialien oder Räume nicht schädigen und die Wirkung der Verbindungen I nicht beeinträchtigen.

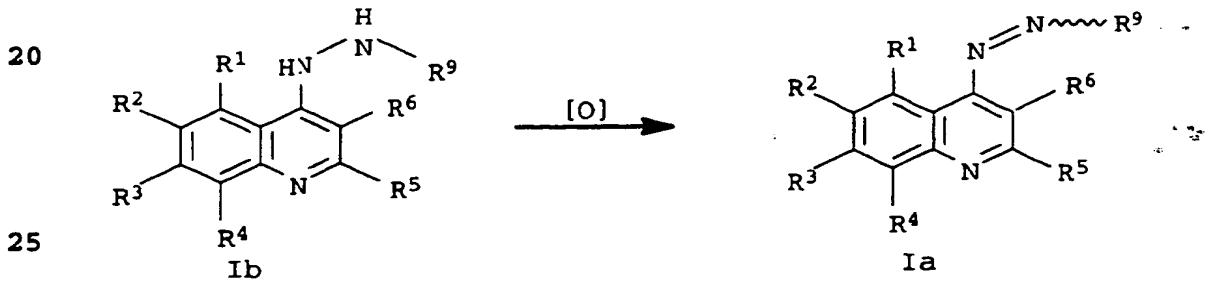
## 5

Die Salze der Verbindungen I sind in an sich bekannter Weise, wie z. Bsp. durch Umsetzen der entsprechenden Chinolinen I, die mit Säuren in Wasser oder einem inerten organischen Lösungsmittel bei Temperaturen zwischen -80° bis 120°, vorzugsweise 0° bis 60°C zugänglich.

Teil der Erfindung sind ebenfalls die N-Oxide der Verbindungen I. Sie können nach literaturbekannten Methoden hergestellt werden (siehe z. Bsp. Ann. Chim. Rome; 46 (1956) 1050)

10

Verbindungen Ia bei denen R<sup>7</sup>, R<sup>8</sup> für eine Bindung stehen, können nach literaturbekannte Methoden hergestellt werden, ( siehe Houben-Weyl; 10/3 Seite 226-423), wie z. Bsp. durch Kupplung aromatischer Diazoniumverbindungen (S.226-311), durch Kondensationsreaktionen ( S. 332-355) oder durch Dehydrierung der Verbindungen der allgemeinen Formel Ib, bei denen R<sup>7</sup>und R<sup>8</sup> Wasserstoff bedeuten (S.377)



Als Oxidationsmittel kommen anorganische und organische Verbindungen, wie z. Bsp. Peroxide, Hypohalogenite, salpetrige 30 Säure, Salpetersäure, Metallsalze wie z. Bsp Fe-III-Salze, Cu-II-Salze, Pb-IV-Salze, aber auch Sauerstoff bzw. Luft infrage.

Geeignete Verdünnungsmittel sind z. Bsp. Wasser, organische und anorganische Säuren wie z. Bsp. Eisessig, Schwefelsäure oder Salpetersäure; Alkohole wie z.B. Methanol, Ethanol; halogenierte Kohlenwasserstoffe, aromatische Kohlenwasserstoffe oder auch Dimethylformamid.

Die Reaktionstemperatur liegt im allgemeinen zwischen 0° und dem 40 jeweiligen Siedepunkt des betreffenden Lösungsmittel.

Bei den eingangs angegebenen Definitionen der Verbindungen I wurden Sammelbegriffe verwendet, die repräsentativ für die folgenden Substituenten stehen:

45

Bei der eingangs angegebenen Definition der Verbindungen I wurden Sammelbegriffe verwendet, die repräsentativ für die folgenden Substituenten stehen:

5 Halogen: Fluor, Chlor, Brom und Jod;

Alkyl: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, z.B. C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl wie Methyl, Ethyl, n-Propyl, 1-Methylethyl, n-Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl,

10 1,1-Dimethylethyl, n-Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl,

3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl,

1,2-Dimethylpropyl, 1-Ethylpropyl, n-Hexyl, 1-Methylpentyl,

2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethyl-

butyl, 2,2-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylbutyl,

15 1,3-Dimethylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl,

1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methyl-

propyl und 1-Ethyl-2-methylpropyl;

Halogenalkyl bzw. partiell oder vollständig halogeniertes Alkyl:

20 geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 4 bzw. 8

Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), wobei in diesen Gruppen die Wasserstoffatome partiell oder vollständig durch Halogenatome (wie vorstehend genannt) ersetzt sein können, z.B.

C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl wie Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl,

25 Fluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Chlorfluormethyl,

Dichlorfluormethyl, Chlordifluormethyl, 1-Fluorethyl, 2-Fluo-

ethyl, 2,2-Difluorethyl, 2,2,2-Trifluorethyl, 2-Chlor-2-fluo-

ethyl, 2-Chlor-2,2-difluorethyl, 2,2-Dichlor-2-fluorethyl,

2,2,2-Trichlorethyl und Pentafluorethyl;

30

Alkoxy: geradkettige oder verzweigte Alkoxygruppen mit 1 bis

4 Kohlenstoffatomen, z.B. C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkoxy wie Methyloxy, Ethyloxy,

Propyloxy und 1-Methylethyloxy;

35 Alkoxyalkyl: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), welche in einer beliebigen Position eine geradkettige oder verzweigte Alkoxygruppe (wie vorstehend genannt) mit im Falle von C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxyalkyl 1 bis 4 Kohlenstoffatomen tragen, wie Methoxymethyl, Ethoxymethyl, n-

40 Propoxymethyl, n-Butoxymethyl, 1-Methoxyethyl, 2-Methoxyethyl,

1-Ethoxyethyl, 2-Ethoxyethyl, 2-n-Propoxyethyl und 2-Butoxyethyl;

Halogenalkoxy: geradkettige oder verzweigte Alkoxygruppen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), wobei in diesen

45 Gruppen die Wasserstoffatome partiell oder vollständig durch

Halogenatome (wie vorstehend genannt) ersetzt sein können, z.B.

C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy wie Chlormethyloxy, Dichlormethyloxy, Tri-

chlorformethoxy, Fluormethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethyl-  
oxy, Chlorfluormethoxy, Dichlorfluormethoxy, Chlordifluor-  
methoxy, 1-Fluorethoxy, 2-Fluorethoxy, 2,2-Difluorethoxy,  
2,2,2-Trifluorethoxy, 2-Chlor-2-fluorethoxy,  
5 2-Chlor-2,2-difluorethoxy, 2,2-Dichlor-2-fluorethoxy,  
2,2,2-Trichlorethoxy und Pentafluorethoxy;

Alkylthio: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis  
4 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt), welche über ein  
10 Schwefelatom (-S-) an das Gerüst gebunden sind, z.B. C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-  
thio wie Methylthio, Ethylthio, Propylthio, 1-Methylethylthio, n-  
Butylthio und tert.-Butylthio;

Alkoxycarbonyl: geradkettige oder verzweigte Alkoxygruppen mit 1  
15 bis 4 C-Atomen (wie vorstehend genannt), welche über eine  
Carbonylgruppe (-CO-) an das Gerüst gebunden sind;

Alkenyl: geradkettige oder verzweigte Alkenylgruppen mit 2 bis  
8 Kohlenstoffatomen und einer Doppelbindung in einer beliebigen  
20 Position, z.B. C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl wie Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl,  
1-Methylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-  
1-propenyl, 2-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-  
2-propenyl, 2-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 1-Pentenyl,  
2-Pentenyl, 3-Pentenyl, 4-Pentenyl, 1-Methyl-1-butenyl, 2-Methyl-  
25 1-butenyl, 3-Methyl-1-butenyl, 1-Methyl-2-butenyl, 2-Methyl-  
2-butenyl, 3-Methyl-2-butenyl, 1-Methyl-3-butenyl, 2-Methyl-  
3-butenyl, 3-Methyl-3-butenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl,  
1,2-Dimethyl-1-propenyl, 1,2-Dimethyl-2-propenyl,  
1-Ethyl-1-propenyl, 1-Ethyl-2-propenyl, 1-Hexenyl, 2-Hexenyl,  
30 3-Hexenyl, 4-Hexenyl, 5-Hexenyl, 1-Methyl-1-pentenyl,  
2-Methyl-1-pentenyl, 3-Methyl-1-pentenyl, 4-Methyl-1-pentenyl,  
1-Methyl-2-pentenyl, 2-Methyl-2-pentenyl, 3-Methyl-2-pentenyl,  
4-Methyl-2-pentenyl, 1-Methyl-3-pentenyl, 2-Methyl-3-pentenyl,  
3-Methyl-3-pentenyl, 4-Methyl-3-pentenyl, 1-Methyl-4-pentenyl,  
35 2-Methyl-4-pentenyl, 3-Methyl-4-pentenyl, 4-Methyl-4-pentenyl,  
1,1-Dimethyl-2-butene, 1,1-Dimethyl-3-butene, 1,2-Dimethyl-  
1-butene, 1,2-Dimethyl-2-butene, 1,2-Dimethyl-3-butene,  
1,3-Dimethyl-1-butene, 1,3-Dimethyl-2-butene, 1,3-Dimethyl-  
3-butene, 2,2-Dimethyl-3-butene, 2,3-Dimethyl-1-butene,  
40 2,3-Dimethyl-2-butene, 2,3-Dimethyl-3-butene, 3,3-Dimethyl-  
1-butene, 3,3-Dimethyl-2-butene, 1-Ethyl-1-butene,  
1-Ethyl-2-butene, 1-Ethyl-3-butene, 2-Ethyl-1-butene,  
2-Ethyl-2-butene, 2-Ethyl-3-butene, 1,1,2-Trimethyl-2-propenyl,  
1-Ethyl-1-methyl-2-propenyl, 1-Ethyl-2-methyl-1-propenyl und  
45 1-Ethyl-2-methyl-2-propenyl;

Alkinyl: geradkettige oder verzweigte Alkinylgruppen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen und einer Dreifachbindung in einer beliebigen Position, z.B. C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyl wie Ethinyl, 1-Propinyl, 2-Propinyl, 1-Butinyl, 2-Butinyl, 3-Butinyl, 1-Methyl-2-propinyl, 1-Pentinyl, 5 2-Pentinyl, 3-Pentinyl, 4-Pentinyl, 1-Methyl-2-butinyl, 1-Methyl-3-butinyl, 2-Methyl-3-butinyl, 3-Methyl-1-butinyl, 1,1-Dimethyl-2-propinyl, 1-Ethyl-2-propinyl, 1-Hexinyl, 2-Hexinyl, 3-Hexinyl, 4-Hexinyl, 5-Hexinyl, 1-Methyl-2-pentinyl, 1-Methyl-3-pentinyl, 1-Methyl-4-pentinyl, 2-Methyl-3-pentinyl, 2-Methyl-4-pentinyl, 10 3-Methyl-1-pentinyl, 3-Methyl-4-pentinyl, 4-Methyl-1-pentinyl, 4-Methyl-2-pentinyl, 1,1-Dimethyl-2-butinyl, 1,1-Dimethyl-3-butinyl, 1,2-Dimethyl-3-butinyl, 2,2-Dimethyl-3-butinyl, 3,3-Dimethyl-1-butinyl, 1-Ethyl-2-butinyl, 1-Ethyl-3-butinyl, 2-Ethyl-3-butinyl und 1-Ethyl-1-methyl-2-propinyl;

15

Cycloalkyl: monocyclische Alkylgruppen mit 3 bis 7 Kohlenstoffringgliedern, z.B. C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl wie Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl und Cycloheptyl;

20 Cycloalkenyl: monocyclische Alkylgruppen mit 5 bis 7 Kohlenstoffringgliedern die eine oder mehrere Doppelbindungen enthalten z.B. C<sub>5</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkenyl wie Cyclopentenyl, Cyclohexenyl und Cycloheptenyl;

25 nicht-aromatische 4- bis 8-gliedrigen Ringe, welcher als Ringglieder neben Kohlenstoff noch ein oder zwei Sauerstoff-, Schwefel- oder Stickstoffatome enthalten wie gesättigte 5- oder 6-gliedrige Ringe mit 1 oder 2 Stickstoff- und/oder Sauerstoffatomen wie 3-Tetrahydrofuranyl, 1-Piperidinyl, 2-Piperidinyl, 30 3-Piperidinyl, 4-Piperidinyl, 2-Tetrahydropyrananyl, 3-Tetrahydropyrananyl, 4-Tetrahydropyrananyl, 2-Morpholinyl und 3-Morpholinyl;

Aryl: monocyclische oder polycyclische aromatische Gruppen mit 6 bis 10 C-Atomen wie Phenyl und Naphthyl;

35

Arylalkyl: Arylgruppen (wie vorstehend genannt), welche im Falle von Aryl-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)-alkyl über Alkylgruppen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen (wie vorstehend genannt) an das Gerüst gebunden sind, z.B. Phenyl-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)-alkyl wie Benzyl, 2-Phenylethyl, 3-Phenylpropyl, 40 4-Phenylbutyl, 1-Phenylethyl, 1-Phenylpropyl und 1-Phenylbutyl;

Aryloxy: Arylgruppen (wie vorstehend genannt), welche über ein Sauerstoffatom (-O-) an das Gerüst gebunden sind wie Phenoxy, 1-Naphthoxy und 2-Naphthoxy;

45

Heteroaryl: aromatische mono- oder polycyclische Reste, welche neben Kohlenstoffringgliedern zusätzlich 1 bis 4 Stickstoffatome oder 1 bis 3 Stickstoffatome und ein Sauerstoff- oder ein Schwefelatom oder ein Sauerstoff- oder ein Schwefelatom enthalten können, z.B.:

- 5-gliedriges Heteroaryl, enthaltend 1 bis 3 Stickstoffatome: 5-Ring-Heteroarylgruppen, welche neben Kohlenstoffatomen 1 bis 3 Stickstoffatome als Ringglieder enthalten können, z.B. 10 2-Pyrrolyl, 3-Pyrrolyl, 3-Pyrazolyl, 4-Pyrazolyl, 5-Pyrazolyl, 2-Imidazolyl, 4-Imidazolyl, 1,2,4-Triazol-3-yl und 1,3,4-Triazol-2-yl;
- 15 5-gliedriges Heteroaryl, enthaltend 1 bis 4 Stickstoffatome oder 1 bis 3 Stickstoffatome und 1 Schwefelatom oder Sauerstoffatom oder 1 Sauerstoff- oder 1 Schwefelatom: 5-Ring-Heteroarylgruppen, welche neben Kohlenstoffatomen 1 bis 4 Stickstoffatome oder 1 bis 3 Stickstoffatome und 1 Schwefel- oder Sauerstoffatom oder 1 Sauerstoff- oder Schwefelatom als Ringglieder enthalten können, z.B. 20 2-Furyl, 3-Furyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyrrolyl, 3-Pyrrolyl, 3-Isoxazolyl, 4-Isoxazolyl, 5-Isoxazolyl, 3-Iothiazolyl, 4-Iothiazolyl, 5-Iothiazolyl, 3-Pyrazolyl, 4-Pyrazolyl, 5-Pyrazolyl, 2-Oxazolyl, 4-Oxazolyl, 5-Oxazolyl, 2-Thiazolyl, 4-Thiazolyl, 25 5-Thiazolyl, 2-Imidazolyl, 4-Imidazolyl, 1,2,4-Oxadiazol-3-yl, 1,2,4-Oxadiazol-5-yl, 1,2,4-Thiadiazol-3-yl, 1,2,4-Thiadiazol-5-yl, 1,2,4-Triazol-3-yl, 1,3,4-Oxadiazol-2-yl, 1,3,4-Thiadiazol-2-yl, 1,3,4-Triazol-2-yl;
- 30 benzokondensiertes 5-gliedriges Heteroaryl, enthaltend 1 bis 3 Stickstoffatome oder 1 Stickstoffatom und/oder ein Sauerstoff- oder Schwefelatom: 5-Ring-Heteroarylgruppen, welche neben Kohlenstoffatomen 1 bis 4 Stickstoffatome oder 1 bis 3 Stickstoffatome und 1 Schwefel- oder Sauerstoffatom oder 1 Sauerstoff- oder ein Schwefelatom als Ringglieder enthalten können, und in welchen 2 benachbarte Kohlenstoffringglieder oder 1 Stickstoff- und 1 benachbartes Kohlenstoffringglied durch eine Buta-1,3-dien-1,4-diylgruppe verbrückt sein können; 35
- 40 über Stickstoff gebundenes 5-gliedriges Heteroaryl, enthaltend 1 bis 4 Stickstoffatome, oder über Stickstoff gebundenes benzokondensiertes 5-gliedriges Heteroaryl, enthaltend 1 bis 3 Stickstoffatome: 5-Ring-Heteroarylgruppen, welche neben Kohlenstoffatomen 1 bis 4 Stickstoffatome bzw. 1 bis 3 Stickstoffatome als Ringglieder enthalten können, und in welchen 2 benachbarte Kohlenstoffringglieder oder ein Stickstoff- und 45

## 10

ein benachbartes Kohlenstoffringglied durch eine Buta-1,3-dien-1,4-diylgruppe verbrückt sein können, wobei diese Ringe über eines der Stickstoffringglieder an das Gerüst gebunden sind;

5

- 6-gliedriges Heteroaryl, enthaltend 1 bis 3 bzw. 1 bis 4 Stickstoffatome: 6-Ring-Heteroarylgruppen, welche neben Kohlenstoffatomen 1 bis 3 bzw. 1 bis 4 Stickstoffatome als Ringglieder enthalten können, z.B. 2-Pyridinyl, 3-Pyridinyl,

10 4-Pyridinyl, 3-Pyridazinyl, 4-Pyridazinyl, 2-Pyrimidinyl, 4-Pyrimidinyl, 5-Pyrimidinyl, 2-Pyrazinyl, 1,3,5-Triazin-2-yl, 1,2,4-Triazin-3-yl und 1,2,4,5-Tetrazin-3-yl;

15 - benzokondensiertes 6-gliedriges Heteroaryl, enthaltend 1 bis 4 Stickstoffatome: 6-Ring-Heteroarylgruppen, in welchen 2 benachbarte Kohlenstoffringglieder durch eine Buta-1,3-dien-1,4-diylgruppe verbrückt sein können, z.B. Chinolin, Isochinolin, Chinazolin und Chinoxalin.

20 Die Angabe "partiell oder vollständig halogeniert" soll zum Ausdruck bringen, daß in den derart charakterisierten Gruppen die Wasserstoffatome zum Teil oder vollständig durch gleiche oder verschiedene Halogenatome, wie vorstehend genannt, ersetzt sein können.

25

Alkylamino: eine Aminogruppe, welche eine geradkettige oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen wie vorstehend genannt trägt;

30 Dialkylamino: eine Aminogruppe, welche zwei voneinander unabhängige, geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen wie vorstehend genannt, trägt;

35 Alkylcarbonyl: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, welche über eine Carbonylgruppe (-CO-) an das Gerüst gebunden sind;

40 Alkylsulfonyl: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 6 oder 10 Kohlenstoffatomen, welche über eine Sulfonylgruppe (-SO<sub>2</sub>-) an das Gerüst gebunden sind;

45 Alkylsulfoxyl: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, welche über eine Sulfoxylgruppe (-S(=O)-) an das Gerüst gebunden sind;

45

Alkylsulfonyloxy: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 6 oder 10 Kohlenstoffatomen, welche über eine Sulfonyloxygruppe (-SO<sub>2</sub>-O) an das Gerüst gebunden sind;

5 Alkylcarbonyloxy: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, welche über eine Carbonyloxygruppe (-CO-O) an das Gerüst gebunden sind;

10 Alkoxy carbonyl: geradkettige oder verzweigte Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, welche über eine Oxy carbonylgruppe (-OC(=O)-) an das Gerüst gebunden sind;

15 Im Hinblick auf ihre biologische Wirkung gegen Schadpilze sind Verbindungen I bevorzugt, in denen

15 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxyalkyl,

20 R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkyl oder Halogen

R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkylcarbonyl, Formyl

25 R<sup>7</sup>R<sup>8</sup> gemeinsam eine Bindung bedeuten

R<sup>9</sup> Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro, Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl, Aryl,

35 Aryloxy in denen die cyclischen Substituenten ihrerseits einen bis drei der folgenden Substituenten tragen können: Halogen, Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-

40 sulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl, Aryl, Aryloxy.

45 Besonders bevorzugt sind Verbindungen I, in denen die Reste die folgenden Bedeutungen haben, und zwar für sich allein oder in Kombinationen:

## 12

zwei der Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> bedeuten Wasserstoff;

drei der Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> bedeuten Wasserstoff;

5 R<sup>3</sup> = Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Halogenalkoxy; bevorzugt Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl, insbesondere Chlor und Methyl;

R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> Wasserstoff, Halogen, Methyl, besonders Wasserstoff;

10

R<sup>5</sup> Wasserstoff, Methyl, Chlor, besonders Wasserstoff;

R<sup>6</sup> Wasserstoff;

15

R<sup>7</sup> Wasserstoff, Methyl, Formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylcarbonyl, besonders Wasserstoff;

R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, Formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylcarbonyl.

20

R<sup>8</sup> Wasserstoff, Formyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl; besonders bevorzugt Wasserstoff, Formyl, CH<sub>3</sub>CO, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl; weiterhin bevorzugt Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, besonders bevorzugt Wasserstoff, Methyl, Ethyl, i-Propyl, n-Butyl,

25

besonders Wasserstoff;

besonders bevorzugt bilden R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> eine gemeinsame Bindung;

30

R<sup>9</sup> Aryl, wobei diese Reste eine bis drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro, Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxycarbonyl, Aryl, Aryloxy in denen die cyclischen

35

Substituenten ihrerseits einen bis drei der folgenden Substituenten tragen können: Halogen, Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-

40

carbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxycarbonyl, Aryl, Aryloxy;

bevorzugt Aryl, wobei diese Reste eine bis drei der folgenden

Gruppen tragen können: Nitro, Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl,

C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, Phenyl, Phenyl-

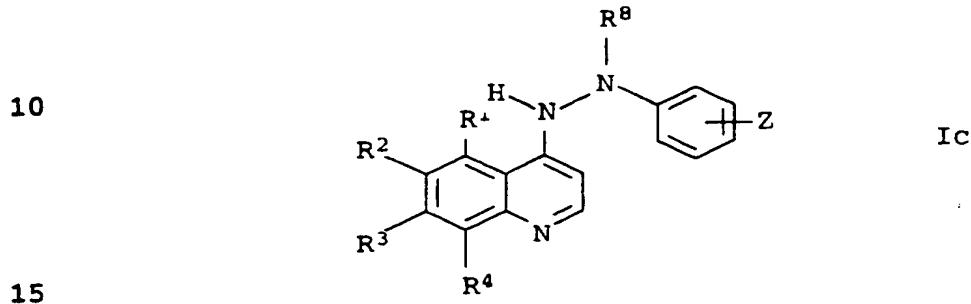
45

oxy.

## 13

Weiterhin bevorzugt sind Verbindungen I in denen R<sup>1</sup> und R<sup>3</sup> die folgende Bedeutung haben, R<sup>1</sup> und R<sup>3</sup> = Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl.

Besonders bevorzugt sind im Hinblick auf ihre Verwendung die in 5 den anschließenden Tabellen zusammengestellten Verbindungen Ic, sowie ihre Hydrochloride und N-Oxide.

Tabelle 1 R<sup>8</sup> = H

	Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
20	12.1	H	H	Cl	H	2-F
	12.2	H	H	Cl	H	2-Cl
	12.3	H	H	Cl	H	2-Br
25	12.4	H	H	Cl	H	2-CN
	12.5	H	H	Cl	H	2-CF <sub>3</sub>
	12.6	H	H	Cl	H	2-NO <sub>2</sub>
	12.7	H	H	Cl	H	2-t-Bu
30	12.8	H	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub>
	12.9	H	H	Cl	H	2-OCH <sub>3</sub>
	12.10	H	H	Cl	H	3-F
	12.11	H	H	Cl	H	3-Cl
35	12.12	H	H	Cl	H	3-CF <sub>3</sub>
	12.13	H	H	Cl	H	3-CN
	12.14	H	H	Cl	H	3-OCH <sub>3</sub>
	12.15	H	H	Cl	H	3-Ph
40	12.16	H	H	Cl	H	4-F
	12.17	H	H	Cl	H	4-Cl
	12.18	H	H	Cl	H	4-Br
	12.19	H	H	Cl	H	4-CF <sub>3</sub>
	12.20	H	H	Cl	H	4-CH <sub>3</sub>
45	12.21	H	H	Cl	H	4-C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
	12.22	H	H	Cl	H	4-CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
12.23	H	H	Cl	H	4-CN
12.24	H	H	Cl	H	2,4-di-F
5 12.25	H	H	Cl	H	2-Cl-4-F
12.26	H	H	Cl	H	2,4-di-Br
10 12.27	H	H	Cl	H	2,4-di-NO <sub>2</sub>
12.28	H	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub> -4-F
12.29	H	H	Cl	H	2,6-di-F
15 12.30	H	H	Cl	H	2,4,6-tri-CH <sub>3</sub>
12.31	F	H	H	H	4-F
12.32	Cl	H	H	H	4-F
12.33	NO <sub>2</sub>	H	H	H	4-F
12.34	H	F	H	H	4-F
20 12.35	H	Cl	H	H	4-F
12.36	H	CH <sub>3</sub>	H	H	4-F
12.37	H	NO <sub>2</sub>	H	H	4-F
25 12.38	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	4-F
12.39	H	H	F	H	4-F
12.40	H	H	Cl	H	4-F
12.41	H	H	Br	H	4-F
25 12.42	H	H	NO <sub>2</sub>	H	4-F
12.43	H	H	OCF <sub>3</sub>	H	4-F
12.44	H	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	4-F
30 12.45	H	H	SCF <sub>3</sub>	H	4-F
12.46	H	H	O-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	4-F
35 12.47	H	H	H	F	4-F
12.48	H	H	H	Cl	4-F
12.49	H	H	H	CF <sub>3</sub>	4-F
35 12.50	F	H	F	H	4-F
12.51	Cl	H	Cl	H	4-F
12.52	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	4-F
12.53	O-CH <sub>3</sub>	H	O-CH <sub>3</sub>	H	4-F
40 12.54	Cl	F	H	H	4-F
12.55	Cl	Cl	H	H	4-F
12.56	Cl	CH <sub>3</sub>	H	H	4-F
12.57	H	Br	H	Cl	4-F
12.58	H	Cl	H	OH	4-F
45 12.59	H	O-CH <sub>3</sub>	H	NO <sub>2</sub>	4-F
12.60	H	F	Cl	H	4-F
12.61	H	CH <sub>3</sub>	Cl	H	4-F

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
5	12.62	H	H	Cl	4-F
	12.63	Cl	H	Cl	4-F
	12.64	Cl	F	Cl	4-F
	12.65	H	H	Cl	4-F
	12.66	Cl	CH <sub>3</sub>	Cl	4-F
10	12.67	Cl	Cl	Cl	4-F
	12.68	Cl	Cl	Cl	4-F
	12.69	H	H	Cl	2-Cl-4F
	12.70	H	H	Cl	2-F-4-Br
	12.71	H	H	Cl	2,3-di-CH <sub>3</sub>
15	12.72	H	H	Cl	2-F-4-Cl
	12.73	H	H	Cl	2,4-di-Cl-6-F
	12.74	H	H	Cl	2,4-di-F
	12.75	H	H	Cl	2,4-di-CH <sub>3</sub>
	12.76	H	H	Cl	2-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
20	12.77	H	H	Cl	2-CH <sub>3</sub> -4-F
	12.78	H	H	Cl	3-CH <sub>3</sub> -4-Cl
	12.79	H	H	Cl	H
	12.80	H	H	Cl	3-CH <sub>3</sub>
	12.81	H	H	Cl	3-Br
25	12.82	H	H	Cl	3-NO <sub>2</sub>
	12.83	H	H	Cl	4-NO <sub>2</sub>
	12.84	H	H	Cl	2-Cl-6-F
	12.85	H	H	Cl	2,3-di-CH <sub>3</sub>
	12.86	H	H	Cl	2,4-di-CH <sub>3</sub>
30	12.87	H	H	Cl	2,5-di-CH <sub>3</sub>
	12.88	H	H	Cl	2,5-di-F
	12.89	H	H	Cl	2-NO <sub>2</sub> -4-CN
	12.90	H	H	Cl	2-CN-3-Cl
	12.91	H	H	Cl	3-CN
35	12.92	H	H	Cl	2,3-di-Cl
	12.93	H	H	Cl	2,5-di-Cl
	12.94	H	H	Cl	2,4,6-tri-Cl
	12.95	H	H	Cl	2,3,4-tri-Cl
	12.96	H	H	Cl	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>
40	12.97	H	H	Cl	2,6-di-Cl
	12.98	H	H	Cl	2-Cl-5-CF <sub>3</sub>
	12.99	H	H	Cl	2-Cl-6-CH <sub>3</sub>
	12.100	H	H	Cl	2-CH <sub>3</sub> -4-Cl

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
12.101	H	H	C1	H	2,4-di-C1
12.102	H	H	C1	H	3,4-di-C1
5 12.103	H	H	C1	H	3,5-di-C1
12.104	H	H	C1	H	3,4-di-CH <sub>3</sub>
12.105	H	H	C1	H	3,5-di-CH <sub>3</sub>
10 12.106	H	H	C1	H	3-Cl-4-CH <sub>3</sub>
12.107	H	H	C1	H	3-Cl-4--F
12.108	H	H	C1	H	3,5-di-CF <sub>3</sub>
12.109	H	H	C1	H	3-CF <sub>3</sub> -6-CH <sub>3</sub> S
12.110	H	H	C1	H	2-CH <sub>3</sub> -5-F
15 12.111	H	H	C1	H	4-CF <sub>3</sub> O
12.112	H	H	C1	H	2-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
12.113	H	H	C1	H	2,6-di-Cl-4-CF <sub>3</sub>
12.114	H	H	C1	H	3-Cl-6-CH <sub>3</sub>
12.115	H	H	C1	H	2-CN-3-F
20 12.116	H	H	C1	H	2-O-CH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>
12.117	H	H	C1	H	4-NO <sub>2</sub>
12.118	H	H	C1	H	4-OCH <sub>3</sub>
12.119	H	H	C1	H	4-SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
25 12.120	C1	H	C1	H	H
12.121	C1	H	C1	H	3-CH <sub>3</sub>
12.122	C1	H	C1	H	3-Br
12.123	C1	H	C1	H	3-NO <sub>2</sub>
30 12.124	C1	H	C1	H	4-NO <sub>2</sub>
12.125	C1	H	C1	H	2-Cl-6-F
12.126	C1	H	C1	H	2,3-di-CH <sub>3</sub>
12.127	C1	H	C1	H	2,4-di-CH <sub>3</sub>
35 12.128	C1	H	C1	H	2,5-di-CH <sub>3</sub>
12.129	C1	H	C1	H	2,5-di-F
12.130	C1	H	C1	H	2-NO <sub>2</sub> -4-CN
12.131	C1	H	C1	H	2-CN-3-C1
40 12.132	C1	H	C1	H	3-CN
12.133	C1	H	C1	H	2,3-di-C1
12.134	C1	H	C1	H	2,5-di-C1
12.135	C1	H	C1	H	2,4,6-tri-C1
45 12.136	C1	H	C1	H	2,3,4-tri-C1
12.137	C1	H	C1	H	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>
12.138	C1	H	C1	H	2,6-di-C1
12.139	C1	H	C1	H	2-Cl-5-CF <sub>3</sub>

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
12.140	C1	H	C1	H	2-Cl-6-CH <sub>3</sub>
12.141	C1	H	C1	H	2-CH <sub>3</sub> -4-Cl
5 12.142	C1	H	C1	H	2,4-di-Cl
12.143	C1	H	C1	H	3,4-di-Cl
10 12.144	C1	H	C1	H	3,5-di-Cl
12.145	C1	H	C1	H	3,4-di-CH <sub>3</sub>
12.146	C1	H	C1	H	3,5-di-CH <sub>3</sub>
12.147	C1	H	C1	H	3-Cl-4-CH <sub>3</sub>
12.148	C1	H	C1	H	3-Cl-4-F
12.149	C1	H	C1	H	3,5-di-CF <sub>3</sub>
12.150	C1	H	C1	H	3-CF <sub>3</sub> -6-CH <sub>3</sub> S
12.151	C1	H	C1	H	2-CH <sub>3</sub> -5-F
12.152	C1	H	C1	H	4-CF <sub>3</sub> O
12.153	C1	H	C1	H	2-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
12.154	C1	H	C1	H	2,6-di-Cl-4-CF <sub>3</sub>
20 12.155	C1	H	C1	H	3-Cl-6-CH <sub>3</sub>
12.156	C1	H	C1	H	2-CN-3-F
12.157	C1	H	C1	H	2-O-CH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>
12.158	C1	H	C1	H	4-NO <sub>2</sub>
25 12.159	C1	H	C1	H	4-OCH <sub>3</sub>
12.160	C1	H	C1	H	4-SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
12.161	C1	H	C1	H	2-F
12.162	C1	H	C1	H	2-Cl
30 12.163	C1	H	C1	H	2-Br
12.164	C1	H	C1	H	2-CN
12.165	C1	H	C1	H	2-CF <sub>3</sub>
12.166	C1	H	C1	H	2-NO <sub>2</sub>
12.167	C1	H	C1	H	2-t-Bu
35 12.168	C1	H	C1	H	2-CH <sub>3</sub>
12.169	C1	H	C1	H	2-OCH <sub>3</sub>
12.170	C1	H	C1	H	3-F
12.171	C1	H	C1	H	3-Cl
40 12.172	C1	H	C1	H	3-CF <sub>3</sub>
12.173	C1	H	C1	H	3-CN
12.174	C1	H	C1	H	3-OCH <sub>3</sub>
12.175	C1	H	C1	H	3-Ph
45 12.176	C1	H	C1	H	4-F
12.177	C1	H	C1	H	4-Cl
12.178	C1	H	C1	H	4-Br

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
12.179	Cl	H	Cl	H	4-CF <sub>3</sub>
12.180	Cl	H	Cl	H	4-CH <sub>3</sub>
5 12.181	Cl	H	Cl	H	4-C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
12.182	Cl	H	Cl	H	4-CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
12.183	Cl	H	Cl	H	4-CN
12.184	Cl	H	Cl	H	2,4-di-F
10 12.185	Cl	H	Cl	H	2-Cl-4-F
12.186	Cl	H	Cl	H	2,4-di-Br
12.187	Cl	H	Cl	H	2,4-di-NO <sub>2</sub>
12.188	Cl	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub> -4-F
12.189	Cl	H	Cl	H	2,6-di-F
15 12.190	Cl	H	Cl	H	2,4,6-tri-CH <sub>3</sub>
12.191	H	H	H	Cl	H
12.192	H	H	F	H	H

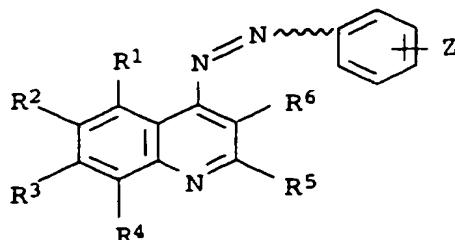
20 Des weiteren sind die folgenden Verbindungen der Formel IC besonders bevorzugt:

- die Verbindungen 1.1a - 1.192a, die sich von den entsprechenden Verbindungen 1.1 - 1.192 der Tabelle 1 dadurch unterscheiden, daß der Substituent R<sup>8</sup> CH<sub>3</sub> bedeutet.
- die Verbindungen 1.1b - 1.192b, die sich von den entsprechenden Verbindungen 1.1 - 1.192 der Tabelle 1 dadurch unterscheiden, daß der Substituent R<sup>8</sup> C<sub>2</sub>H<sub>5</sub> bedeutet.
- 30 - die Verbindungen 1.1c - 1.192c, die sich von den entsprechenden Verbindungen 1.1 - 1.192 der Tabelle 1 dadurch unterscheiden, daß der Substituent R<sup>8</sup> i-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub> bedeutet.
- 35 - die Verbindungen 1.1d - 1.192d, die sich von den entsprechenden Verbindungen 1.1 - 1.192 der Tabelle 1 dadurch unterscheiden, daß der Substituent R<sup>8</sup> c-C<sub>5</sub>H<sub>9</sub> bedeutet.
- die Verbindungen 1.1e - 1.192e, die sich von den entsprechenden Verbindungen 1.1 - 1.192 der Tabelle 1 dadurch unterscheiden, daß der Substituent R<sup>8</sup> CH<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>H<sub>5</sub> bedeutet.
- 40 - die Verbindungen 1.1f - 1.192f, die sich von den entsprechenden Verbindungen 1.1 - 1.192 der Tabelle 1 dadurch unterscheiden, daß der Substituent R<sup>8</sup> COCH<sub>3</sub> bedeutet.
- 45 -

## 19

Tabelle 2

5



Id

 $R^5, R^6 = H$ 

10

Nr.	$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	Z
2.193	H	H	Cl	H	2-Cl
2.194	H	H	Cl	H	2-Br
15 2.195	H	H	Cl	H	2-CN
2.196	H	H	Cl	H	2-CF <sub>3</sub>
2.197	H	H	Cl	H	2-NO <sub>2</sub>
2.198	H	H	Cl	H	2-t-Bu
20 2.199	H	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub>
2.200	H	H	Cl	H	2-OCH <sub>3</sub>
2.201	H	H	Cl	H	3-F
2.202	H	H	Cl	H	3-Cl
25 2.203	H	H	Cl	H	3-CF <sub>3</sub>
2.204	H	H	Cl	H	3-CN
2.205	H	H	Cl	H	3-OCH <sub>3</sub>
2.206	H	H	Cl	H	3-Ph
2.207	H	H	Cl	H	4-F
30 2.208	H	H	Cl	H	4-Cl
2.209	H	H	Cl	H	4-Br
2.210	H	H	Cl	H	4-CF <sub>3</sub>
2.211	H	H	Cl	H	4-CH <sub>3</sub>
35 2.212	H	H	Cl	H	4-C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
2.213	H	H	Cl	H	4-CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
2.214	H	H	Cl	H	4-CN
2.215	H	H	Cl	H	2,4-di-F
40 2.216	H	H	Cl	H	2-Cl-4-F
2.217	H	H	Cl	H	2,4-di-Br
2.218	H	H	Cl	H	2,4-di-NO <sub>2</sub>
2.219	H	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub> -4-F
45 2.220	H	H	Cl	H	2,6-di-F
2.221	H	H	Cl	H	2,4,6-tri-CH <sub>3</sub>
2.222	F	H	H	H	4-F

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
2.223	Cl	H	H	H	4-F
2.224	NO <sub>2</sub>	H	H	H	4-F
5 2.225	H	F	H	H	4-F
2.226	H	Cl	H	H	4-F
2.227	H	CH <sub>3</sub>	H	H	4-F
10 2.228	H	NO <sub>2</sub>	H	H	4-F
2.229	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	4-F
2.230	H	H	F	H	4-F
2.231	H	H	Cl	H	4-F
15 2.232	H	H	Br	H	4-F
2.233	H	H	NO <sub>2</sub>	H	4-F
2.234	H	H	OCF <sub>3</sub>	H	4-F
2.235	H	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	4-F
2.236	H	H	SCF <sub>3</sub>	H	4-F
2.237	H	H	O-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	4-F
20 2.238	H	H	H	F	4-F
2.239	H	H	H	Cl	4-F
2.240	H	H	H	CF <sub>3</sub>	4-F
2.241	F	H	F	H	4-F
25 2.242	Cl	H	Cl	H	4-F
2.243	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	4-F
2.244	O-CH <sub>3</sub>	H	O-CH <sub>3</sub>	H	4-F
2.245	Cl	F	H	H	4-F
30 2.246	Cl	Cl	H	H	4-F
2.247	Cl	CH <sub>3</sub>	H	H	4-F
2.248	H	Br	H	Cl	4-F
2.249	H	Cl	H	OH	4-F
35 2.250	H	O-CH <sub>3</sub>	H	NO <sub>2</sub>	4-F
2.251	H	F	Cl	H	4-F
2.252	H	CH <sub>3</sub>	Cl	H	4-F
2.253	H	H	Cl	Cl	4-F
40 2.254	Cl	H	H	Cl	4-F
2.255	Cl	F	Cl	H	4-F
2.256	H	H	Cl	CN	4-F
2.257	Cl	CH <sub>3</sub>	Cl	H	4-F
2.258	Cl	Cl	Cl	H	4-F
45 2.259	Cl	Cl	Cl	Cl	4-F
2.260	H	H	H	Cl	2-Cl-4F
2.261	H	H	H	Cl	2-F-4-Br

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z	
5	2.262	H	H	H	C1	2,3-di-CH <sub>3</sub>
	2.263	H	H	H	C1	2-F-4-Cl
	2.264	H	H	H	C1	2,4-di-Cl-6-F
	2.265	H	H	H	C1	2,4-di-F
	2.266	H	H	H	C1	2,4-di-CH <sub>3</sub>
10	2.267	H	H	H	C1	2-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
	2.268	H	H	H	C1	2-CH <sub>3</sub> -4-F
	2.269	H	H	H	C1	3-CH <sub>3</sub> -4-Cl
	2.270	H	H	Cl	H	H
	2.271	H	H	Cl	H	3-CH <sub>3</sub>
15	2.272	H	H	Cl	H	3-Br
	2.273	H	H	Cl	H	3-NO <sub>2</sub>
	2.274	H	H	Cl	H	4-NO <sub>2</sub>
	2.275	H	H	Cl	H	2-Cl-6-F
	2.276	H	H	Cl	H	2,3-di-CH <sub>3</sub>
20	2.277	H	H	Cl	H	2,4-di-CH <sub>3</sub>
	2.278	H	H	Cl	H	2,5-di-CH <sub>3</sub>
	2.279	H	H	Cl	H	2,5-di-F
	2.280	H	H	Cl	H	2-NO <sub>2</sub> -4-CN
	2.281	H	H	Cl	H	2-CN-3-Cl
25	2.282	H	H	Cl	H	3-CN
	2.283	H	H	Cl	H	2,3-di-Cl
	2.284	H	H	Cl	H	2,5-di-Cl
	2.285	H	H	Cl	H	2,4,6-tri-Cl
	2.286	H	H	Cl	H	2,3,4-tri-Cl
30	2.287	H	H	Cl	H	2-Cl-4-CF <sub>3</sub>
	2.288	H	H	Cl	H	2,6-di-Cl
	2.289	H	H	Cl	H	2-Cl-5-CF <sub>3</sub>
	2.290	H	H	Cl	H	2-Cl-6-CH <sub>3</sub>
	2.291	H	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub> -4-Cl
35	2.292	H	H	Cl	H	2,4-di-Cl
	2.293	H	H	Cl	H	3,4-di-Cl
	2.294	H	H	Cl	H	3,5-di-Cl
	2.295	H	H	Cl	H	3,4-di-CH <sub>3</sub>
	2.296	H	H	Cl	H	3,5-di-CH <sub>3</sub>
40	2.297	H	H	Cl	H	3-Cl-4-CH <sub>3</sub>
	2.298	H	H	Cl	H	3-Cl-4-F
	2.299	H	H	Cl	H	3,5-di-CF <sub>3</sub>
	2.300	H	H	Cl	H	3-CF <sub>3</sub> -6-CH <sub>3</sub> S

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
5	2.301	H	H	C1	H
	2.302	H	H	C1	H
	2.303	H	H	C1	H
	2.304	H	H	C1	H
	2.305	H	H	C1	H
10	2.306	H	H	C1	H
	2.307	H	H	C1	H
	2.308	H	H	C1	H
	2.309	H	H	C1	H
	2.310	H	H	C1	H
15	2.311	C1	H	C1	H
	2.312	C1	H	C1	H
	2.313	C1	H	C1	H
	2.314	C1	H	C1	H
	2.315	C1	H	C1	H
20	2.316	C1	H	C1	H
	2.317	C1	H	C1	H
	2.318	C1	H	C1	H
	2.319	C1	H	C1	H
	2.320	C1	H	C1	H
25	2.321	C1	H	C1	H
	2.322	C1	H	C1	H
	2.323	C1	H	C1	H
	2.324	C1	H	C1	H
	2.325	C1	H	C1	H
30	2.326	C1	H	C1	H
	2.327	C1	H	C1	H
	2.328	C1	H	C1	H
	2.329	C1	H	C1	H
	2.330	C1	H	C1	H
35	2.331	C1	H	C1	H
	2.332	C1	H	C1	H
	2.333	C1	H	C1	H
	2.334	C1	H	C1	H
	2.335	C1	H	C1	H
40	2.336	C1	H	C1	H
	2.337	C1	H	C1	H
	2.338	C1	H	C1	H
	2.339	C1	H	C1	H

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
2.340	C1	H	C1	H	3,5-di-CF <sub>3</sub>
2.341	C1	H	C1	H	3-CF <sub>3</sub> -6-CH <sub>3</sub> S
5	2.342	C1	H	C1	2-CH <sub>3</sub> -5-F
2.343	C1	H	C1	H	4-CF <sub>3</sub> O
10	2.344	C1	H	C1	2-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
2.345	C1	H	C1	H	2,6-di-Cl-4-CF <sub>3</sub>
15	2.346	C1	H	C1	3-Cl-6-CH <sub>3</sub>
2.347	C1	H	C1	H	2-CN-3-F
20	2.348	C1	H	C1	2-O-CH <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>
2.349	C1	H	C1	H	4-NO <sub>2</sub>
25	2.350	C1	H	C1	4-OCH <sub>3</sub>
2.351	C1	H	C1	H	4-SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>
30	2.352	C1	H	C1	2-F
2.353	C1	H	C1	H	2-Cl
35	2.354	C1	H	C1	2-Br
2.355	C1	H	C1	H	2-CN
40	2.356	C1	H	C1	2-CF <sub>3</sub>
2.357	C1	H	C1	H	2-NO <sub>2</sub>
45	2.358	C1	H	C1	2-t-Bu
2.359	C1	H	C1	H	2-CH <sub>3</sub>
2.360	C1	H	C1	H	2-OCH <sub>3</sub>
30	2.361	C1	H	C1	3-F
2.362	C1	H	C1	H	3-Cl
35	2.363	C1	H	C1	3-CF <sub>3</sub>
2.364	C1	H	C1	H	3-CN
40	2.365	C1	H	C1	3-OCH <sub>3</sub>
2.366	C1	H	C1	H	3-Ph
45	2.367	C1	H	C1	4-F
2.368	C1	H	C1	H	4-Cl
2.369	C1	H	C1	H	4-Br
2.370	C1	H	C1	H	4-CF <sub>3</sub>
2.371	C1	H	C1	H	4-CH <sub>3</sub>
2.372	C1	H	C1	H	4-C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
2.373	C1	H	C1	H	4-CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
2.374	C1	H	C1	H	4-CN
2.375	C1	H	C1	H	2,4-di-F
2.376	C1	H	C1	H	2-Cl-4-F
2.377	C1	H	C1	H	2,4-di-Br
2.378	C1	H	C1	H	2,4-di-NO <sub>2</sub>

Nr.	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	Z
5	2.379	C1	H	C1	H
	2.380	C1	H	C1	2,6-di-F
	2.381	C1	H	C1	2,4,6-tri-CH <sub>3</sub>
	2.382	H	H	H	C1
	2.383	H	H	F	C1
	2.384	H	H	C1	H
					2-F

10

Die neuen Verbindungen der Formel I eignen sich als Fungizide.

Die neuen Verbindungen, bzw. die sie enthaltenden Mittel können beispielsweise in Form von direkt versprühbaren Lösungen,

15 Pulvern, Suspensionen, auch hochprozentigen wässrigen, ölichen oder sonstigen Suspensionen oder Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, Streumitteln oder Granulaten durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungsformen richten sich nach den Verwendungszwecken; sie sollten in jedem Fall möglichst die feinste Verteilung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gewährleisten.

20 Normalerweise werden die Pflanzen mit den Wirkstoffen besprüht oder bestäubt oder die Samen der Pflanzen mit den Wirkstoffen behandelt.

25 Die Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Verstrecken des Wirkstoffs mit Lösungsmitteln und/oder Trägerstoffen, gewünschtenfalls unter Verwendung von Emulgiermitteln und Dispergiermitteln, wobei im Falle von Wasser als Verdünnungsmittel auch andere organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden können. Als Hilfsstoffe kommen dafür im wesentlichen in Betracht: Lösungsmittel wie Aromaten (z.B. Xylol), chlorierte Aromaten (z.B. Chlorbenzole), Paraffine (z.B. Erdölfraktionen), Alkohole (z.B. Methanol, Butanol), Ketone (z.B. Cyclohexanon), Amine (z.B. Ethanolamin, Dimethylformamid) und Wasser; Trägerstoffe wie natürliche Gesteinsmehle (z.B. Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide) und synthetische Gesteinsmehle (z.B. hochdisperse Kieselsäure, Silikate); Emulgiermittel wie nicht-40 ionogene und anionische Emulgatoren (z.B. Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, Alkylsulfonate und Arylsulfonate) und Dispergiermittel wie Ligninsulfatblaugen und Methylcellulose.

45 Als oberflächenaktive Stoffe kommen die Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von aromatischen Sulfonsäuren, z.B. Lignin-, Phenol-, Naphthalin- und Dibutylnaphthalinsulfonsäure, sowie von Fettsäuren, Alkyl- und Alkylarylsulfonaten, Alkyl-, Laurylether-

und Fettalkoholsulfaten, sowie Salze sulfatierter Hexa-, Hepta- und Octadecanolen, sowie von Fettalkoholglykolether, Kondensationsprodukte von sulfonierte Naphthalin und seiner Derivate mit Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der 5 Naphthalinsulfonsäuren mit Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes iso-Octyl-, Octyl- oder Nonylphenol, Alkylphenol-, Tributylphenylpolyglykolether, Alkylarylpolyetheralkohole, iso-Tridecylalkohol, Fettalkoholethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkyl-10 ether oder Polyoxypropylen, Laurylalkoholpolyglykoletheracetat, Sorbitester, Lignin-Sulfitablaugen oder Methylcellulose in Be- tracht.

Pulver-, Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder ge- 15 meinsames Vermahlen der wirksamen Substanzen mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.

Granulate, z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- und Homogengranulate können durch Bindung der Wirkstoffe an feste Trägerstoffe herge- 20 stellt werden. Feste Trägerstoffe sind Mineralerden wie Silicagel, Kieselsäuren, Kieselgele, Silikate, Talkum, Kaolin, Kalkstein, Kalk, Kreide, Bolus, Löß, Ton, Dolomit, Diatomeenerde, Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, Düngemittel, wie Ammoniumsulfat, Ammoniumphosphat, 25 Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte, wie Getreidemehl, Baumrinden-, Holz- und Nußschalenmehl, Cellulosepulver oder andere feste Trägerstoffe.

Beispiele für solche Zubereitungen sind:

30 I. eine Lösung aus 90 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I und 10 Gew.-Teilen N-Methyl-2-pyrrolidon, die zur Anwendung in Form kleinster Tropfen geeignet ist;

35 II. eine Mischung aus 10 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 70 Gew.-Teilen Xylol, 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 8 bis 10 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ölsäure-N-monoethanolamid, 5 Gew.-Teilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure, 5 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl; 40 durch feines Verteilen der Lösung in Wasser erhält man eine Dispersion.

III. eine wässrige Dispersion aus 10 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 40 Gew.-Teilen Cyclohexanon, 30 Gew.-Teilen iso-Butanol, 20 Gew.-Teilen des

Anlagerungsproduktes von 40 mol Ethylenoxid an 1 mol Ricinusöl;

IV. eine wässrige Dispersion aus 10 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 25 Gew.-Teilen Cyclohexanol, 55 Gew.-Teilen einer Mineralölfaktion vom Siedepunkt 210 bis 280°C und 10 Gew.-Teilen des Anlagerungsproduktes von 40 mol Ethylenoxid an 1 mol Ricinusöl;

10 V. eine in einer Hammermühle vermahlene Mischung aus 80 Gew.-Teilen, vorzugsweise einer festen erfindungsgemäßen Verbindung I, 3 Gew.-Teilen des Natriumsalzes der Di-isobutylnaphthalin-2-sulfonsäure, 10 Gew.-Teilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfitablauge und 7 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel; durch feines Verteilen der Mischung in Wasser erhält man eine Spritzbrühe;

VI. eine innige Mischung aus 3 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I und 97 Gew.-Teilen feinteiligem Kaolin; dieses Stäubemittel enthält 3 Gew.-% Wirkstoff;

VII. eine innige Mischung aus 30 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 62 Gew.-Teilen pulverförmigem Kieselsäuregel und 8 Gew.-Teilen Paraffinöl, das auf die Oberfläche dieses Kieselsäuregels gesprührt wurde; diese Aufbereitung gibt dem Wirkstoff eine gute Haftfähigkeit;

VIII. eine stabile wässrige Dispersion aus 40 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 10 Gew.-Teilen des Natriumsalzes eines Phenolsulfonsäure-Harnstoff-Formaldehyd-Kondensates, 2 Gew.-Teilen Kieselgel und 48 Gew.-Teilen Wasser, die weiter verdünnt werden kann;

35 IX. eine stabile ölige Dispersion aus 20 Gew.-Teilen einer erfindungsgemäßen Verbindung I, 2 Gew.-Teilen des Calciumsalzes der Dodecylbenzolsulfonsäure, 8 Gew.-Teilen Fettalkoholpolyglykolether, 20 Gew.-Teilen des Natriumsalzes eines Phenolsulfonsäure-Harnstoff-Formaldehyd-Kondensates und 50 Gew.-Teilen eines paraffinischen Mineralöls.

Die neuen Verbindungen zeichnen sich durch eine hervorragende Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum von pflanzenpathogenen 45 Pilzen, insbesondere aus der Klasse der Deuteromyceten, Ascomyceten, Phycomyceten und Basidiomyceten, aus. Sie sind zum

Teil systemisch wirksam und können als Blatt- und Bodenfungizide eingesetzt werden.

Besondere Bedeutung haben sie für die Bekämpfung einer Vielzahl 5 von Pilzen an verschiedenen Kulturpflanzen wie Weizen, Roggen, Gerste, Hafer, Reis, Mais, Rasen, Baumwolle, Soja, Kaffee, Zuckerrohr, Wein, Obst- und Zierpflanzen und Gemüsepflanzen wie Gurken, Bohnen und Kürbisgewächsen, sowie an den Samen dieser Pflanzen.

10

Die Verbindungen werden angewendet, indem man die Pilze oder die vor Pilzbefall zu schützenden Saatgüter, Pflanzen, Materialien oder den Erdboden mit einer fungizid wirksamen Menge der Wirkstoffe behandelt.

15

Die Anwendung erfolgt vor oder nach der Infektion der Materialien, Pflanzen oder Samen durch die Pilze.

Speziell eignen sich die neuen Verbindungen zur Bekämpfung 20 folgender Pflanzenkrankheiten:

Erysiphe graminis (echter Mehltau) in Getreide, Erysiphe cichoracearum und Sphaerotheca fuliginea an Kürbisgewächsen, Podosphaera leucotricha an Äpfeln, Uncinula necator an Reben, 25 Puccinia-Arten an Getreide, Rhizoctonia-Arten an Baumwolle und Rasen, Ustilago-Arten an Getreide und Zuckerrohr, Venturia inaequalis (Schorf) an Äpfeln, Helminthosporium-Arten an Getreide, Septoria nodorum an Weizen, Botrytis cinerea (Grauschimmel) an Erdbeeren, Reben, Zierpflanzen und Gemüse, 30 Cercospora arachidicola an Erdnüssen, Pseudocercospora herpotrichoides an Weizen, Gerste, Pyricularia oryzae an Reis, Phytophthora infestans an Kartoffeln und Tomaten, Fusarium- und Verticillium-Arten an verschiedenen Pflanzen, Plasmopara viticola an Reben, Alternaria-Arten an Gemüse und Obst.

35

Die neuen Verbindungen können auch im Materialschutz (Holzschutz) eingesetzt werden, z.B. gegen Paecilomyces variotii.

Die fungiziden Mittel enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 40 95, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 Gew.-% Wirkstoff.

Die Aufwandmengen liegen je nach Art des gewünschten Effektes zwischen 0,025 und 2, vorzugsweise 0,1 bis 1 kg Wirkstoff pro ha.

45

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50, vorzugsweise 0,01 bis 10 g je Kilogramm Saatgut benötigt.

5 Die erfindungsgemäßen Mittel können in der Anwendungsform als Fungizide auch zusammen mit anderen Wirkstoffen vorliegen, z.B. mit Herbiziden, Insektiziden, Wachstumsregulatoren, Fungiziden oder auch mit Düngemitteln.

10 Beim Vermischen mit Fungiziden erhält man dabei in vielen Fällen eine Vergrößerung des fungiziden Wirkungsspektrums.

Die folgende Liste von Fungiziden, mit denen die erfindungsgemäßen Verbindungen gemeinsam angewendet werden können, soll die 15 Kombinationsmöglichkeiten erläutern, nicht aber einschränken:

Schwefel, Dithiocarbamate und deren Derivate, wie Ferridimethyl-dithiocarbamat, Zinkdimethyldithiocarbamat, Zinkethylenbisdithiocarbamat, Manganethylenbisdithiocarbamat, Mangan-Zink-ethylen-20 diamin-bis-dithiocarbamat, Tetramethylthiuramdisulfide, Ammoniak-Komplex von Zink-(N,N-ethylen-bis-dithiocarbamat), Ammoniak-Komplex von Zink-(N,N'-propylen-bis-dithiocarbamat), Zink-(N,N'-propylen-bis-dithiocarbamat), N,N'-Polypropylen-bis-(thiocarbamoyl)-disulfid;

25 Nitroderivate, wie Dinitro-(1-methylheptyl)-phenylcrotonat, 2-sec.-Butyl-4,6-dinitrophenyl-3,3-dimethylacrylat, 2-sec.-Butyl-4,6-dinitrophenyl-iso-propylcarbonat, 5-Nitro-iso-phthal-säure-di-iso-propylester;

30 heterocyclische Substanzen, wie 2-Heptadecyl-2-imidazolin-acetat, 2,4-Dichlor-6-(o-chloranilino)-s-triazin, O,O-Diethyl-phthal-imidophosphonothioat, 5-Amino-1-[bis-(dimethylamino)-phosphinyl]-3-phenyl-1,2,4-triazol, 2,3-Dicyano-1,4-dithioanthrachinon, 35 2-Thio-1,3-dithiolo[4,5-b]chinoxalin, 1-(Butylcarbamoyl)-2-benz-imidazol-carbaminsäuremethylester, 2-Methoxycarbonylamino-benz-imidazol, 2-(Furyl-(2))-benzimidazol, 2-(Thiazolyl-(4))-benzimidazol, N-(1,1,2,2-Tetrachlorethylthio)-tetrahydropthalimid, N-Trichlormethylthio-tetrahydropthalimid, N-Trichlormethylthio-40 phthalimid,

N-Dichlorfluormethylthio-N',N'-dimethyl-N-phenyl-schwefelsäure-diamid, 5-Ethoxy-3-trichlormethyl-1,2,3-thiadiazol, 2-Rhodan-methylthiobenzthiazol, 1,4-Dichlor-2,5-dimethoxybenzol, 45 4-(2-Chlorphenylhydrazone)-3-methyl-5-isoxazolon, Pyridin-2-thion-1-oxid, 8-Hydroxychinolin bzw. dessen Kupfersalz, 2,3-Di-hydro-5-carboxanilido-6-methyl-1,4-oxathiin, 2,3-Dihydro-

5-carboxanilido-6-methyl-1,4-oxathiin-4,4-dioxid, 2-Methyl-5,6-dihydro-4H-pyran-3-carbonsäure-anilid, 2-Methyl-furan-3-carbonsäureanilid, 2,5-Dimethyl-furan-3-carbonsäureanilid, 2,4,5-Trimethyl-furan-3-carbonsäureanilid, 2,5-Dimethyl-furan-3-carbonsäurecyclohexylamid, N-Cyclohexyl-N-methoxy-2,5-dimethyl-furan-3-carbonsäureamid, 2-Methyl-benzoësäure-anilid, 2-Iod-benzoësäure-anilid, N-Formyl-N-morpholin-2,2,2-trichlorethylacetal, Piperazin-1,4-diylbis-(1-(2,2,2-trichlor-ethyl)-formamid, 1-(3,4-Dichloranilino)-1-formylamino-2,2,2-trichlorethan,

10 2,6-Dimethyl-N-tridecyl-morpholin bzw. dessen Salze, 2,6-Dimethyl-N-cyclododecyl-morpholin bzw. dessen Salze, N-[3-(p-tert.-Butylphenyl)-2-methylpropyl]-cis-2,6-dimethylmorpholin, N-[3-(p-tert.-Butylphenyl)-2-methylpropyl]-piperidin,

15 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-4-ethyl-1,3-dioxolan-2-yl-ethyl]-1H-1,2,4-triazol 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-4-n-propyl-1,3-dioxolan-2-yl-ethyl]-1H-1,2,4-triazol, N-(n-Propyl)-N-(2,4,6-trichlorphenoxyethyl)-N'-imidazol-yl-harnstoff, 1-(4-Chlorphenoxy)-3,3-dimethyl-1-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-2-butanon, (2-Chlorphenyl)-(4-chlorphenyl)-5-pyrimidin-methanol, 5-Butyl-2-dimethylamino-4-hydroxy-6-methyl-pyrimidin, Bis-(p-chlorphenyl)-3-pyridinemethanol, 1,2-Bis-(3-ethoxycarbonyl-2-thioureido)-benzol, 1,2-Bis-(3-methoxycarbonyl-2-thioureido)-benzol, [2-(4-Chlorphenyl)ethyl]-(1,1-dimethylethyl)-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,

20 25 1-[3-(2-Chlorphenyl)-1-(4-fluorphenyl)oxiran-2-yl-methyl]-1H-1,2,4-triazol sowie verschiedene Fungizide, wie Dodecylguanidinacetat, 3-[3-(3,5-Dimethyl-2-oxycyclohexyl)-2-hydroxyethyl]glutarimid, Hexachlorbenzol, DL-Methyl-N-(2,6-dimethyl-phenyl)-N-furoyl(2)-alaninat, DL-N-(2,6-Dimethyl-phenyl)-N-(2'-methoxyacetyl)-alanin-methyl-ester, N-(2,6-Dimethylphenyl)-N-chloracetyl-D,L-2-aminobutyrolacton, DL-N-(2,6-Dimethylphenyl)-N-(phenylacetyl)-alaninmethyl-ester, 5-Methyl-5-vinyl-3-(3,5-dichlorphenyl)-2,4-dioxo-1,3-oxazolidin, 3-[(3,5-Dichlorphenyl)-5-methyl-5-methoxymethyl-1,3-oxazolidin-2,4-dion, 3-(3,5-Dichlorphenyl)-1-iso-propylcarbamoylhydantoin, N-(3,5-Dichlorphenyl)-1,2-dimethylcyclopropan-1,2-dicarbonsäureimid, 2-Cyano-[N-(ethylaminocarbonyl)-2-methoximino]-acetamid, 1-[2-(2,4-Dichlorphenyl)-pentyl]-1H-1,2,4-triazol, 2,4-Difluor- $\alpha$ -(1H-1,2,4-triazolyl-1-methyl)-benzhydrylalkohol, N-(3-Chlor-2,6-dinitro-4-trifluormethyl-phenyl)-5-trifluoromethyl-3-chlor-2-aminopyridin, 1-((bis-(4-Fluorphenyl)-methylsilyl)-methyl)-1H-1,2,4-triazol,

## 30

Strobilurine wie Methyl-E-methoximino-[ $\alpha$ -(o-tolyloxy)-o-toly]acetat, Methyl-E-2-[2-[6-(2-cyanophenoxy)pyridimin-4-yl-oxy]phenyl]-3-methoxyacrylat, Methyl-E-methoximino-[ $\alpha$ -(2,5-dimethyloxy)-o-toly]acetamid.

5

Anilino-Pyrimidine wie N-(4,6-dimethylpyrimidin-2-yl)anilin, N-[4-methyl-6-(1-propinyl)pyrimidin-2-yl]anilin, N-(4-methyl-6-cyclopropyl-pyrimidin-2-yl)anilin.

10 Phenylpyrrole wie 4-(2,2-difluor-1,3-benzodioxol-4-yl)-pyrrol-3-carbonitril.

Zimtsäureamide wie 3-(4-chlorphenyl)-3-(3,4-dimethoxyphenyl)acrylsäuremorpholid.

15

7-Chlor-4-(N'-(3-Fluorphenylhydrazino)chinolin Hydrochlorid

5 g (0,026 mol) 4,7-Dichlorchinolin, 4,72 g (0,029 mol) 3-Fluorphenylhydrazinhydrochlorid werden in 50 ml i-Butanol solange re-

20 fluxiert bis keine Ausgangsverbindung mehr nachgewiesen werden kann (HPLC-Kontrolle).

Nach dem Abkühlen wird der entstandene Niederschlag abgesaugt, mit Diisopropylether nachgewaschen und getrocknet. Man erhält

25 5,9 g (70%) der Titelverbindung.

7-Chlor-4-(3-fluorphenylazo)chinolin

Zu 3,6 g (0,011 mol) 7-Chlor-4-(N'-(3-Fluorphenylhydra-

30 zino)chinolin Hydrochlorid in 50 ml Eisessig werden 4,34 g (0,027 mol) Eisen-III-chlorid gegeben und 30 min refluxiert. Nach dem Abkühlen wird auf 500 ml Eiswasser gegeben und mit Ammoniumhydroxid-Lösung auf pH 10 gebracht. Der entstandene Niederschlag wird abgesaugt und mehrmals mit Ethanol extrahiert. Die

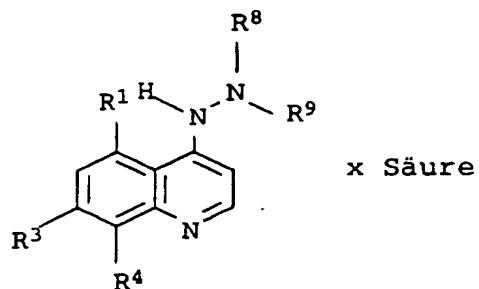
35 ethanolische Phase wird mit Wasser versetzt und der entstandene Niederschlag abgesaugt.

Es werden 1,6 g (51%) der Azoverbindung erhalten. (Fp. 145-147°)

40 Tabelle 3

(Physikalische Daten: IR [cm<sup>-1</sup>], <sup>13</sup>C [ppm gegen Tetramethylsilan], Smp. [°C])

45



5

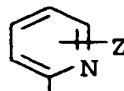
10

	Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>8</sup>	R <sup>9</sup>	Säure	IR [cm <sup>-1</sup> ]; <sup>13</sup> C (Atom); Smp. (°)
15	3.1	H	Cl	H	H	2-Fluorphenyl	HCl	157,4 (C-4)
	3.2	H	Cl	H	H	2-Methylphe- nyl	HCl	157,4 (C-4)
20	3.3	H	Cl	H	H	2-Chlorphenyl	HCl	157,3 (C-4)
	3.4	H	Cl	H	H	2-Bromphenyl	HCl	>240°
25	3.5	H	Cl	H	H	3-Chlorphenyl	HCl	>240°
	3.6	H	Cl	H	H	3-Fluorphenyl	HCl	>240°
	3.7	H	Cl	H	H	4-Chlorphenyl	HCl	3180, 2916, 1621, 1583, 1492, 1448, 1211, 864, 825
30	3.8	H	Cl	H	H	4-Fluorphenyl	HCl	>240°
	3.9	H	Cl	H	H	4-Methylphe- nyl	HCl	3160, 2747, 1616, 1584, 1449, 1208, 819
35	3.10	H	Cl	H	H	4-tert.Butyl- phenyl	HCl	>240°
	3.11	H	Cl	H	H	Phenyl	HCl	>240°
40	3.12	H	Cl	H	H	2,4-Dimethyl- phenyl	HCl	157,3 (C-4)
	3.13	H	Cl	H	H	2,4,6-Trich- lorphenyl	HCl	>240°
	3.14	H	Cl	H	CH <sub>3</sub>	Phenyl	HCl	>240°
	3.15	H	Cl	H	H	2-Chlorphenyl	HCl	>240°
	3.16	H	Cl	H	H	3-Trifluorme- thylphenyl	HCl	>240°
45	3.17	H	CF <sub>3</sub>	H	H	4-Chlorphenyl	HCl	
	3.18	H	H	Cl	H	2-Fluorphenyl	HCl	
	3.19	Cl	Cl	H	H	4-Fluorphenyl	HCl	
	3.20	H	Cl	H	CH <sub>3</sub>	2-Chlorphenyl	HCl	

Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>8</sup>	R <sup>9</sup>	Säure	IR [cm <sup>-1</sup> ]; 13C (Atom); Smp. (°)
3.21	Cl	Cl	H	H	2-Methylphe-nyl	HCl	
3.22	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	2-Chlorphenyl	HCl	
3.23	H	H	Cl	H	Phenyl	HCl	
3.24	H	F	H	H	4-Chlorphenyl	HCl	
3.25	H	CH <sub>3</sub>	H	H	4-Chlorphenyl	HCl	
3.26	H	Cl	H	H	4-Chlorphenyl	HOOCOOH	
3.27	H	Cl	H	H	4-Chlorphenyl	p-CH <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -SO <sub>3</sub> H	
3.28	Cl	Cl	H	H	4-Chlorphenyl	HCl	3060, 2800, 1608, 1584, 1546, 1487, 1399, 870, 644
3.29	Cl	Cl	H	H	2-Chlorphenyl	HCl	157 (C-4)
3.30	Cl	Cl	H	H	3-Trifluorme-thyl-5-chlor-phenyl	HCl	183-184°
3.31	H	H	Cl	H	2-Chlorphenyl	HCl	> 240°

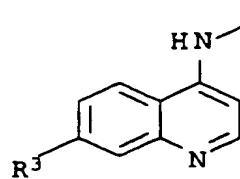
Tabelle 4

25



1h

30

35 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup>, R<sup>8</sup> = H

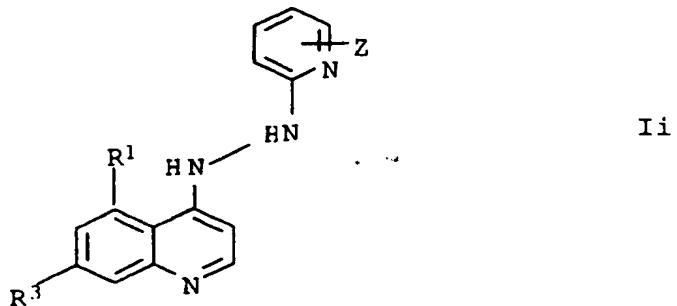
Nr.	R <sup>3</sup>	Z	Smp. [°C]
6.1	Cl	2-F-3-CF <sub>3</sub> -5-Cl	216-218
6.2	Cl	2-OCH <sub>3</sub> -3-C1-5-CF <sub>3</sub>	130-132
6.3	Cl	2-C1-3-CF <sub>3</sub> -5-C1	265
6.4	Cl	3-CF <sub>3</sub> -5-C1	222-225
6.5	Cl	3-CF <sub>3</sub>	162-165
6.6	Cl	3,5-di-CF <sub>3</sub>	180
6.7	Cl	3-C1-5-CF <sub>3</sub>	198-201

Nr.	R <sup>3</sup>	Z	Smp. [°C]
6.8	Cl	2-CF <sub>3</sub>	176-180
6.9	Cl	2-CH <sub>3</sub> -4-CF <sub>3</sub>	199-201

5

Tabelle 5

10



15

 $R^2, R^4, R^5, R^6, R^7, R^8 = H$ 

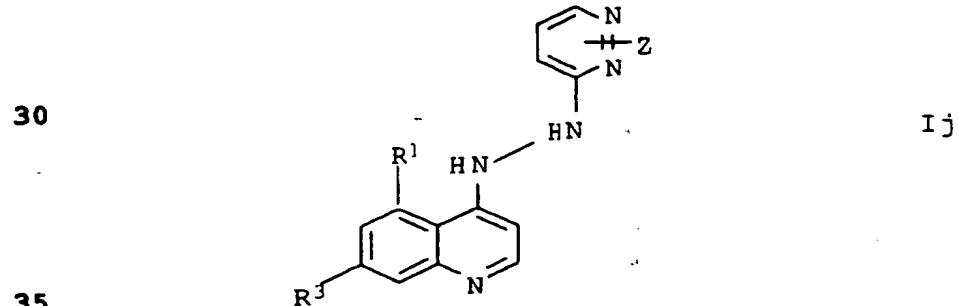
20

Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	Z	Smp. [°C]
7.1	Cl	Cl	3-CF <sub>3</sub> -5-Cl	183-184
7.2	Cl	Cl	3-CF <sub>3</sub>	165-167

25

Tabelle 6

30



35

 $R^2, R^4, R^5, R^6, R^7, R^8 = H$ 

40

Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	Z	Smp. [°C]
8.1	Cl	Cl	4-Cl	183-186
8.2	H	Cl	4-Cl	211-213

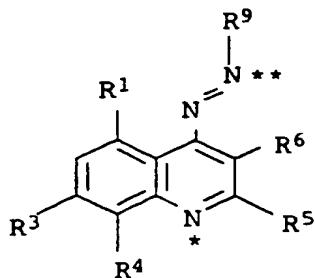
45

Tabelle 7

(Physikalische Daten: IR [cm<sup>-1</sup>], <sup>13</sup>C [ppm gegen Tetramethylsilan], Smp. [°C])

5

10



15

	Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>9</sup>	Smp. [°]
7.1	7.1	H	Cl	H	2-Chlorphenyl	160-163
7.2	7.2	H	Cl	H	2-Fluorphenyl	133-135
7.3	7.3	H	Cl	H	3-Fluorphenyl	145-147
7.4	7.4	H	Cl	H	4-Methylphenyl	103-105
7.5	7.5	H	Cl	H	4-Fluorphenyl	159-160
7.6	7.6	H	Cl	H	4-Chlorphenyl	163-165
7.7	7.7	H	Cl	H	Phenyl	105-108
7.8	7.8	H	Cl	H	2-Methylphenyl	94-96
7.9	7.9	H	Cl	H	3-Chlorphenyl	120-122
7.10	7.10	H	H	Cl	Phenyl	139-141
7.11	7.11	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	4-Methylphenyl	138-140
7.12	7.12	H	F	H	4-Fluorphenyl	102-104
7.13	7.13	H	F	H	4-Fluorphenyl	122-124
7.14	7.14	H	F	H	4-Chlorphenyl	167-168
7.15	7.15	H	CH <sub>3</sub>	H	4-Chlorphenyl	92-94
7.16	7.16	H	CH <sub>3</sub>	H	4-Fluorphenyl	96-98
7.17	7.17	Cl	Cl	H	2-Chlorphenyl	186-188
7.18	7.18	Cl	Cl	H	4-Chlorphenyl	188-189
7.19	7.19	H	CF <sub>3</sub>	H	4-Chlorphenyl	170-173
7.20	7.20	H	H	Cl	2-Chlorphenyl	160-162
7.21	7.21	H	H	Cl	4-Chlorphenyl	204-205
7.22	7.22	H	H	Cl	2-Fluorphenyl	165-167
7.23	7.23	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	4-Chlorphenyl	164-166
7.24	7.24	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	4-Fluorphenyl	117-118
7.25	7.25	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	2-Chlorphenyl	114-116

Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>9</sup>	Smp. [°]	
5	7.26	C1	C1	H	2-Fluorphenyl	160-163
	7.27	H	C1	H	2,4,6-Trichlor-phenyl	191-193
	7.28	C1	C1	H	2-Methylphenyl	118-120
	7.29	H	C1	H	3-Trifluormethylphenyl	121-123
	7.30	H	C1	H	2,4-Dimethylphenyl	114-116
	7.31	C1	C1	H	4-Fluorphenyl	128-130
10	7.32	H	C1	H	2-Bromphenyl	157-159
	7.33	H	C1	H	4-Chlorphenyl	168-170 <sup>1)</sup>
	7.34	H	C1	H	4-Fluorphenyl	177-178 <sup>1)</sup>
	7.35	H	C1	H	4-Chlorphenyl	136-139 <sup>2)</sup>
	7.36	H	C1	H	4-Chlorphenyl	180-183 <sup>3)</sup>

1) N-Oxid am Stickstoffatom \*\*

20 2) N-Oxid am Stickstoffatom \*\*\*

3) N-Oxid am Stickstoffatom \*\* und am Stickstoffatom \*\*\*

#### Anwendungsbeispiel 1

#### 25 Wirksamkeit gegen Weizenmehltau

Blätter von in Töpfen gewachsenen Weizenkeimlingen der Sorte "Frühgold" wurden mit wäßriger Spritzbrühe, die 80 % Wirkstoff und 20 % Emulgiermittel in der Trockensubstanz enthielten, be-30 sprüht und 24 Stunden nach dem Antrocknen des Spritzbelages mit Oidien (Sporen) des Weizenmehltaus (Erysiphe graminis var. triticici) bestäubt. Die Versuchspflanzen wurden anschließend im Ge-wächshaus bei Temperaturen zw. 20 und 22°C und 75 bis 80 % relati-35 ver Luftfeuchtigkeit aufgestellt. Nach 7 Tagen wurde das Ausmaß der Mehltauentwicklung ermittelt.

Bonitur:

Angabe der befallenen Blattfläche in Prozent

#### 40 Tabelle 10

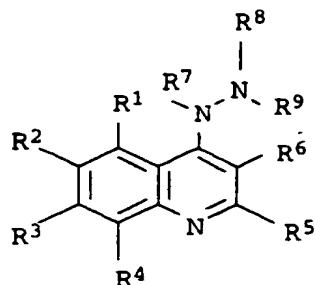
Wirkstoff	% -Befall der Blätter nach Applikation von wäßriger Wirkstoffaufbereitung in ppm		
45 Nr. 1.17	63	16	4 ppm
	0	1	8
Unbehandelt	-	80	-

## Patentansprüche

## 1. Chinoline der Formel I

5

10



I

in der die Substituenten die folgende Bedeutung haben:

15

$R^1, R^2, R^3, R^4$  jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Hydroxy, Nitro, Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxyalkyl,

20

$R^5, R^6$  jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio;

25

$R^7$  Wasserstoff,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl, Formyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylcarbonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy carbonyl;

30

$R^8$  Wasserstoff, Formyl,  $C_1$ - $C_8$ -Alkyl,  $C_2$ - $C_8$ -Alkenyl,  $C_2$ - $C_8$ -Alkinyl oder  $C_1$ - $C_8$ -Alkylcarbonyl, wobei diese Gruppen partiell oder vollständig halogeniert sein können,  $C_3$ - $C_7$ -Cycloalkyl, oder  $C_3$ - $C_7$ -Cycloalkenyl wobei diese Reste partiell oder vollständig halogeniert sein können,

35

40

Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro, Halogen, Cyano,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylamino, Di- $C_1$ - $C_4$ -Alkylamino,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyloxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylcarbonyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylcarbonyloxy,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy carbonyl, Aryl, Aryloxy;

45

$R^7$  und  $R^8$  bilden gemeinsam eine Bindung;

R<sup>9</sup> Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis  
 5 drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro,  
 Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-  
 thio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl,  
 10 Aryl, Aryloxy in denen die cyclischen  
 Substituenten ihrerseits einen bis drei der fol-  
 genden Substituenten tragen können: Halogen,  
 Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino,  
 15 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl,  
 Aryl, Aryloxy;

20 sowie die N-Oxide und die Säure-Additions-Salze der Chinoline  
 der Formel I, ausgenommen die Verbindungen gemäß folgender  
 Definition der Reste:

1 a-d R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>, 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 2,4-di-  
 25 Cl-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>, 2,4-di-Br-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>,  
 1 e-h R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 2,4-di-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>  
 jeweils als N-Oxid und HCl-Salz,  
 1 i R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = 4-Br-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> HBr-Salz  
 1 j-k R<sup>1,2,3,4,6,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>7</sup> = H, CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>  
 30 1 m R<sup>1,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>2,5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>,  
 1 n R<sup>1</sup> = O-CH<sub>3</sub>; R<sup>2,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = C<sub>6</sub>H<sub>5</sub> HCl-  
 Salz,  
 1 o-q R<sup>1,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>2</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = 4-NO<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>; HCl-Salz,  
 N-oxid  
 35 1 r-s R<sup>1,2,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>3</sup> = Cl; R<sup>9</sup> = 4-NO<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>  
 1 t-u R<sup>1,2,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = Cl; R<sup>9</sup> = 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, 2,4-di-  
 Cl-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>  
 1 v-x R<sup>1,4,6,7</sup> = H; R<sup>3</sup> = H; R<sup>2</sup> = H, CH<sub>3</sub>O; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub> R<sup>8,9</sup> =  
 CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl HCl-Salz,  
 40 1 x R<sup>1,4,6,7</sup> = H; R<sup>3</sup> = Cl; R<sup>2</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub> R<sup>8,9</sup> =  
 CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl HCl-Salz,  
 1 y R<sup>1,4,6,7</sup> = H; R<sup>3</sup> = H; R<sup>2</sup> = Cl; R<sup>5</sup> = H R<sup>8,9</sup> = CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl  
 HCl-Salz,  
 1 z R<sup>1,2,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>3</sup> = Cl; R<sup>9</sup> = CH<sub>2</sub>-3-Py,  
 45 2 a-b R<sup>1,2,3,4,5,6,7,8</sup> = H; R<sup>9</sup> = chinolin-4-yl, Di-N-Oxid,  
 2 c R<sup>1,2,3,4,6,7,8</sup> = H; R<sup>5</sup> = CH<sub>3</sub>; R<sup>9</sup> = chinolin-4-yl, Di-  
 N-Oxid,

## 38

2 d-o	$R^{1,2,3,4,5,6} = H; R^9 = C_6H_5, C_6H_5\text{-N-Oxid, } 4\text{-Cl-C}_6H_4,$ $4\text{-Cl-C}_6H_4\text{-N-Oxid, } 4\text{-Br-C}_6H_4, 4\text{-Br-C}_6H_4\text{-N-Oxid, }$ $2,4\text{-Cl-C}_6H_3, 2,4\text{-Cl-C}_6H_3\text{-N-Oxid, } 2,4\text{-Br-C}_6H_3,$ $2,4\text{-Br-C}_6H_3\text{-N-Oxid, } 4\text{-}(CH_3)_2N\text{-C}_6H_4, 4\text{-}(CH_3)_2N\text{-C}_6H_4$ N-Oxid,	
5	2 p-q	$R^{1,3,6} = H; R^5 = CH_3, R^9 = C_6H_5; R^2 = OCH_3, R^4 =$ $OCH_3;$
	2 r-s	$R^{1,3,6} = H; R^5 = CH_3; R^9 = C_6H_5; R^2 = OCH_2CH_3; R^4 =$ $OCH_2CH_3;$
10	2 t-v	$R^{1,2,3,4,6} = H; R^5 = Ce; R^9 = C_6H_5, 4\text{-Cl-C}_6H_4,$ $2,4\text{-Cl-C}_6H_3,$
	2 w	$R^{1,2,4,5,6} = H; R^3 = Cl; R^9 = C_6H_5,$
	2 x	$R^{1,2,3,4,6} = H; R^5 = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
	2 y	$R^{1,2,3,4} = H; R^{5,6} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
15	2 z	$R^{2,3,4,6} = H; R^{1,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
	3 a	$R^{1,3,4,6} = H; R^{2,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
	3 b	$R^{1,2,3,6} = H; R^{4,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
	3 c	$R^{2,4,6} = H; R^{1,3,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5,$
	3 d	$R^{1,3,6} = H; R^{2,4,5} = CH_3; R^9 = C_6H_5.$
20	2.	Chinoline der Formel I nach Anspruch 1, in der die Substituenten die folgende Bedeutung haben:
25	$R^1, R^2, R^3, R^4$	jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, $C_1\text{-}C_4\text{-Alkyl, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkoxy, } C_1\text{-}C_4\text{-Halogenalkyl, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylthio, } C_1\text{-}C_4\text{-Halogenalkoxy, } C_1\text{-}C_4\text{-Halogenalkylthio, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkoxyalkyl, }$
30	$R^5, R^6$	jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, $C_1\text{-}C_2\text{-Alkyl oder Halogen; }$
	$R^7$ und $R^8$	jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, $C_1\text{-}C_6\text{-Alkyl, } C_1\text{-}C_3\text{-Alkylcarbonyl, Formyl; }$
35	$R^7, R^8$	bilden gemeinsam eine Bindung;
40	$R^9$	Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro, Halogen, Cyano, $C_1\text{-}C_4\text{-Alkyl, } C_1\text{-}C_4\text{-Halogenalkyl, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkoxy, } C_1\text{-}C_4\text{-Halogenalkoxy, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylthio, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylamino, } Di\text{-}C_1\text{-}C_4\text{-Alkylamino, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylsulfonyl, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylsulfoxy, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylsulfonyloxy, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylcarbonyl, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkylcarbonyloxy, } C_1\text{-}C_4\text{-Alkoxy carbonyl, }$
45		Aryl, Aryloxy in denen die cyclischen Substituenten ihrerseits einen bis drei der folgenden Substituenten tragen können: Halogen,

5

Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxyacarbonyl,  
 Aryl, Aryloxy.

3. Chinoline der Formel I nach Anspruch 1, in der der  
 10 Substituent R<sup>3</sup> folgende Bedeutung hat:

R<sup>3</sup> Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyloxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Halogenalkoxy.

15 4. Chinoline der Formel I nach Anspruch 1, in der die  
 Substituenten R<sup>1</sup> und R<sup>3</sup> die folgende Bedeutung haben:

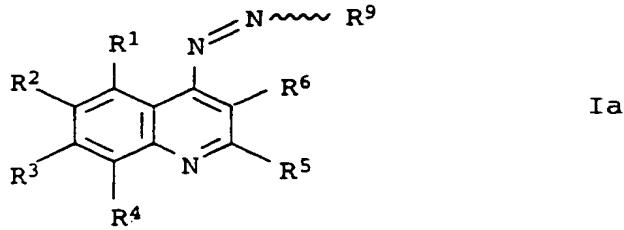
R<sup>1</sup> und R<sup>3</sup> = Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-Alkyl.

20 5. Chinoline der Formel I nach Anspruch 1, in der zwei der  
 Substituenten R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> oder R<sup>4</sup> Wasserstoff bedeuten.

6. Chinolin der Formel Ia gemäß Anspruch 1,

25

30



in der die Substituenten R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup> und R<sup>9</sup> die in  
 Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben.

35

7. Chinoline der Formel Ia nach Anspruch 6, in der die  
 Substituenten folgende Bedeutung haben:

40

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Ha-  
 logen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogen-  
 alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxyalkyl;

45

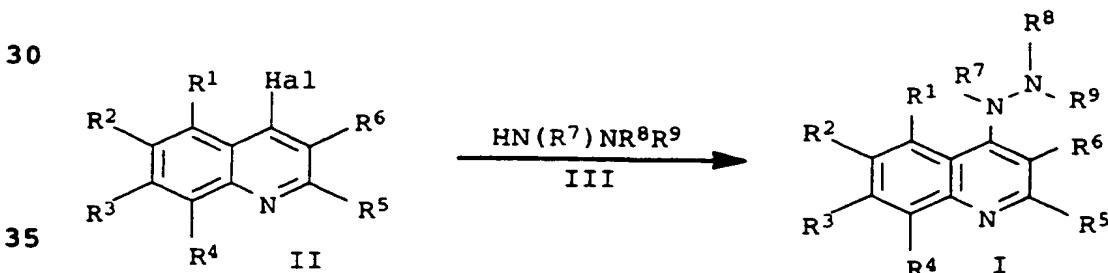
R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkyl oder Halogen;

## 40

R<sup>9</sup> Aryl oder Heteroaryl, wobei diese Reste eine bis  
 drei der folgenden Gruppen tragen können: Nitro,  
 Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl,  
 Aryl, Aryloxy in denen die cyclischen  
 10 Substituenten ihrerseits einen bis drei der fol-  
 genden Substituenten tragen können: Halogen,  
 Nitro, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino,  
 15 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfoxy,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyl,  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylcarbonyloxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy carbonyl,  
 Aryl, Aryloxy.

20 8. Verwendung der Chinoline der Formel I oder eines ihrer N-Oxide oder Säure-Additions-Salze gemäß Anspruch 1, einschließlich der Verbindungen 1a bis 3d, zur Bekämpfung von Schadpilzen.

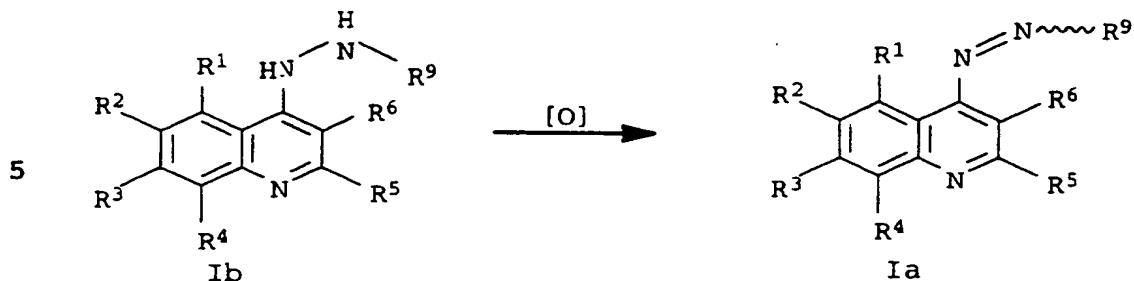
25 9. Verfahren zur Herstellung der Chinoline der Formel I gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man 4-Halogenchinoline der Formel II mit Hydrazinen der Formel III umsetzt,



wobei die Substituenten R<sup>1</sup> bis R<sup>9</sup> die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben und Hal für J, Br, Cl oder F steht.

45 10. Verfahren zur Herstellung der Chinoline der Formel Ia gemäß Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß man die Chinoline der Formel Ib, mit einem Oxidationsmittel oxidiert

41



10 wobei die Substituenten  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$  und  $R^9$  die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben.

11. Fungizide Mittel, enthaltend eine fungizid wirksame Menge  
mindestens eines Chinolins der Formel I oder eines ihrer N-  
15 Oxide oder Säure-Additions-Salze gemäß Anspruch 1, ausgenom-  
men die Verbindungen 1a bis 3d.

12. Verfahren zur Bekämpfung von Schadpilzen, dadurch gekenn-  
zeichnet, daß man die Schadpilze, deren Lebensraum oder die  
20 von ihnen freizuhaltenden Pflanzen, Flächen, Materialien oder  
Räume mit einer fungizid wirksamen Menge einer Verbindung der  
allgemeinen Formel I oder eines ihrer N-Oxide oder Säure-  
Additions-Salze gemäß Anspruch 1, einschließlich der  
Verbindungen 1a bis 3d, oder einem ein Chinolin der Formel I  
25 enthaltenden fungiziden Mittel gemäß Anspruch 11 behandelt.

30

35

40

45

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Application No

PCT/EP 96/03894

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
 IPC 6 C07D215/42 A01N43/42 C07D401/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
 IPC 6 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 123, no. 17,      23 October 1995      Columbus, Ohio, US;      abstract no. 228065u,      REZNIKOV, V.A. ET AL: "Synthesis of new      spin labels ..."      XP002019569      RN 168335-08-8, -07-7 *</p> <p>see abstract</p> <p>&amp; IZV. AKAD. NAUK, SER. KHIM.,      vol. 3, - 1994      pages 465-468,</p> <p>---</p> <p style="text-align: center;">-/-</p>	1

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

27 November 1996

Date of mailing of the international search report

05.12.96

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentstaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
 Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

Van Bijlen, H

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 96/03894

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 96, no. 23, 7 June 1982 Columbus, Ohio, US; abstract no. 199551r, HOLLYWOOD, FRANK ET AL: "Photolysis of quinolyl . . ." XP002019570 RN 81675-10-7 *</p> <p>see abstract &amp; J. CHEM. SOC., PERKIN TRANS. 1, vol. 2, - 1982 pages 431-433,</p> <p>---</p>	1
X	<p>CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 117, no. 8, 24 August 1992 Columbus, Ohio, US; abstract no. 82700z, MOTOMIZU, SHOJI ET AL: "Flow-injection method . . ." XP002019571 RN 131036-13-0 *</p> <p>see abstract &amp; ANAL. CHIM. ACTA, vol. 261, no. 1-2, - 1992 pages 471-475,</p> <p>---</p>	1
X	<p>CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 84, no. 9, 1 March 1976 Columbus, Ohio, US; abstract no. 53784z, PELLERANO, C. ET AL: "Anticestode quinolinehydrazones" XP002019572 cited in the application * RN 58044-65-8 *</p> <p>see abstract &amp; FARMACO, ED. SCI., vol. 30, no. 12, - 1975 pages 965-973,</p> <p>---</p>	1
A	EP 0 326 330 A (ELI LILLY AND COMPANY) 2 August 1989 see claims	1,8,11
A	US 4 801 592 A (BASF AG) 31 January 1989 see claims	1,8,11
A	EP 0 326 331 A (ELI LILLY AND COMPANY) 2 August 1989 see claims	1,8,11
1 1	<p>EP 0 326 328 A (ELI LILLY AND COMPANY) 2 August 1989 see claims</p> <p>---</p> <p style="text-align: center;">-/-</p>	1

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Patent Application No
PCT/EP 96/03894

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 94 04527 A (DOWELANCO) 3 March 1994 see claims -----	1,8,11
A	EP 0 244 705 A (HOECHST AG) 11 November 1987 see claims -----	1,8,11

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International Application No

PCT/EP 96/03894

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP-A-326330	02-08-89	AU-A-	2872889	03-08-89
		CN-A, B	1034925	23-08-89
		EG-A-	18859	29-09-94
		FI-B-	94523	15-06-95
		HU-B-	208611	28-12-93
		JP-A-	1246263	02-10-89
		US-A-	5145843	08-09-92
		US-A-	5240940	31-08-93
US-A-4801592	31-01-89	DE-A-	3644825	14-07-88
		DE-A-	3775198	23-01-92
		EP-A-	0275520	27-07-88
		JP-A-	63174986	19-07-88
EP-A-326331	02-08-89	AU-A-	2874689	03-08-89
		CA-A-	1335995	20-06-95
		CN-A-	1034717	16-08-89
		EG-A-	18804	29-09-94
		FI-B-	94522	15-06-95
		JP-A-	1246266	02-10-89
		US-A-	5114939	19-05-92
		US-A-	5294622	15-03-94
EP-A-326328	02-08-89	AU-A-	2874889	03-08-89
		CN-A-	1034924	23-08-89
		JP-A-	1246264	02-10-89
		US-A-	5296484	22-03-94
WO-A-9404527	03-03-94	AU-A-	4790893	15-03-94
		CN-A-	1083811	16-03-94
EP-A-244705	11-11-87	DE-A-	3614595	05-11-87
		AU-A-	7219287	05-11-87

# INTERNATIONALES RECHERCHENBERICHT

nales Aktenzeichen  
PCT/EP 96/03894

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 6 C07D215/42 A01N43/42 C07D401/12

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprässtoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole)  
IPK 6 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprässtoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 123, no. 17, 23.Oktober 1995 Columbus, Ohio, US; abstract no. 228065u, REZNIKOV, V.A. ET AL: "Synthesis of new spin labels ..." XP002019569 RN 168335-08-8, -07-7 * siehe Zusammenfassung &amp; IZV. AKAD. NAUK, SER. KHIM., Bd. 3, - 1994 Seiten 465-468,</p> <p>---</p> <p>-/-</p>	1

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- \* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- \*' A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- \*' E' älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmelddatum veröffentlicht worden ist
- \*' L' Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- \*' O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- \*' P' Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmelddatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

- \*' T' Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmelddatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- \*' X' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- \*' Y' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- \*' &' Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Anmelddatum des internationalen Recherchenberichts

27. November 1996

05.12.96

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Van Bijlen, H

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 96/03894

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 96, no. 23, 7.Juni 1982 Columbus, Ohio, US; abstract no. 199551r, HOLLYWOOD,FRANK ET AL: "Photolysis of quinolyl ...." XP002019570 RN 81675-10-7 * siehe Zusammenfassung & J. CHEM. SOC.,PERKIN TRANS. 1, Bd. 2, - 1982 Seiten 431-433, ---	1
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 117, no. 8, 24.August 1992 Columbus, Ohio, US; abstract no. 82700z, MOTOMIZU,SHOJI ET AL: "Flow-injection method ..." XP002019571 RN 131036-13-0 * siehe Zusammenfassung & ANAL. CHIM. ACTA, Bd. 261, Nr. 1-2, - 1992 Seiten 471-475, ---	1
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 84, no. 9, 1.März 1976 Columbus, Ohio, US; abstract no. 53784z, PELLERANO,C. ET AL: "Anticestode quinolinedhydrazones" XP002019572 in der Anmeldung erwähnt * RN 58044-65-8 * siehe Zusammenfassung & FARMACO,ED. SCI., Bd. 30, Nr. 12, - 1975 Seiten 965-973, ---	1
A	EP 0 326 330 A (ELI LILLY AND COMPANY) 2.August 1989 siehe Ansprüche ---	1,8,11
A	US 4 801 592 A (BASF AG) 31.Januar 1989 siehe Ansprüche ---	1,8,11
A	EP 0 326 331 A (ELI LILLY AND COMPANY) 2.August 1989 siehe Ansprüche ---	1,8,11
1 1	EP 0 326 328 A (ELI LILLY AND COMPANY) 2.August 1989 siehe Ansprüche ---	1
		-/-

**INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT**

ales Aktenzeichen
PCT/EP 96/03894

**C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 94 04527 A (DOWELANCO) 3.März 1994 siehe Ansprüche ---	1,8,11
A	EP 0 244 705 A (HOECHST AG) 11.November 1987 siehe Ansprüche -----	1,8,11

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 96/03894

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP-A-326330	02-08-89	AU-A-	2872889	03-08-89
		CN-A, B	1034925	23-08-89
		EG-A-	18859	29-09-94
		FI-B-	94523	15-06-95
		HU-B-	208611	28-12-93
		JP-A-	1246263	02-10-89
		US-A-	5145843	08-09-92
		US-A-	5240940	31-08-93
US-A-4801592	31-01-89	DE-A-	3644825	14-07-88
		DE-A-	3775198	23-01-92
		EP-A-	0275520	27-07-88
		JP-A-	63174986	19-07-88
EP-A-326331	02-08-89	AU-A-	2874689	03-08-89
		CA-A-	1335995	20-06-95
		CN-A-	1034717	16-08-89
		EG-A-	18804	29-09-94
		FI-B-	94522	15-06-95
		JP-A-	1246266	02-10-89
		US-A-	5114939	19-05-92
		US-A-	5294622	15-03-94
EP-A-326328	02-08-89	AU-A-	2874889	03-08-89
		CN-A-	1034924	23-08-89
		JP-A-	1246264	02-10-89
		US-A-	5296484	22-03-94
WO-A-9404527	03-03-94	AU-A-	4790893	15-03-94
		CN-A-	1083811	16-03-94
EP-A-244705	11-11-87	DE-A-	3614595	05-11-87
		AU-A-	7219287	05-11-87

